

This Page Is Inserted by IFW Operations
and is not a part of the Official Record

BEST AVAILABLE IMAGES

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images may include (but are not limited to):

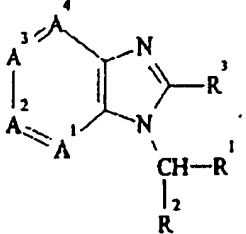
- BLACK BORDERS
- TEXT CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
- FADED TEXT
- ILLEGIBLE TEXT
- SKEWED/SLANTED IMAGES
- COLORED PHOTOS
- BLACK OR VERY BLACK AND WHITE DARK PHOTOS
- GRAY SCALE DOCUMENTS

IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

**As rescanning documents *will not* correct images,
please do not report the images to the
Image Problems Mailbox.**

PCT
 WELTORGANISATION FÜR GEISTIGES EIGENTUM
 Internationales Büro
 INTERNATIONALE ANMELDUNG VERÖFFENTLICHT NACH DEM VERTRAG ÜBER DIE
 INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM GEBIET DES PATENTWESENS (PCT)



| | | |
|---|-----------|--|
| <p>(51) Internationale Patentklassifikation ⁵ : C07D 471/04, 487/04, A01N 43/90</p> | A1 | <p>(11) Internationale Veröffentlichungsnummer: WO 94/22859</p> <p>(43) Internationales Veröffentlichungsdatum: 13. Oktober 1994 (13.10.94)</p> |
| <p>(21) Internationales Aktenzeichen: PCT/EP94/00786</p> <p>(22) Internationales Anmeldedatum: 14. März 1994 (14.03.94)</p> <p>(30) Prioritätsdaten: P 43 09 969.6 26. März 1993 (26.03.93) DE</p> <p>(71) Anmelder (für alle Bestimmungsstaaten ausser US): BAYER AKTIENGESellschaft (DE/DE); D-51368 Leverkusen (DE).</p> <p>(72) Erfinder: und (75) Erfinder/Anmelder (nur für US): BAASNER, Bernd (DE/DE); Wagnerstrasse 83, D-51467 Bergisch Gladbach (DE). LIEB, Folker (DE/DE); Alfred-Kubin-Strasse 1, D-51375 Leverkusen (DE). SANTEL, Hans-Joachim (DE/DE); Grünstrasse 9a, D-51371 Leverkusen (DE). DOLLINGER, Markus (DE/DE); Burscheiderstrasse 154b, D-51381 Leverkusen (DE).</p> <p>(74) Anwalt: BAYER AKTIENGESellschaft; D-51368 Leverkusen (DE).</p> | | |
| <p>(81) Bestimmungsstaaten: AU, BB, BG, BR, BY, CA, CN, CZ, FI, HU, JP, KR, KZ, LK, NO, NZ, PL, RO, RU, SK, UA, US, europäisches Patent (AT, BE, CH, DE, DK, ES, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE), OAPI Patent (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, ML, MR, NE, SN, TD, TG).</p> <p>Veröffentlicht <i>Mit internationalen Recherchenbericht.</i></p> | | |
| <p>(54) Title: SUBSTITUTED HETEROANNULATED IMIDAZOLES AND THEIR USE AS HERBICIDES</p> <p>(54) Bezeichnung: SUBSTITUIERTE, HETEROANELLIERTE IMIDAZOLE UND IHRE VERWENDUNG ALS HERBIZIDE</p> <p>(57) Abstract</p> <p>New substituted heteroannulated imidazoles having general formula (I), in which R¹, R², R³, A¹, A², A³ and A⁴ have the meanings given in the description, are disclosed, as well as a process for preparing the same and their use as herbicides.</p> <div style="display: flex; align-items: center; justify-content: center;">  <div style="margin-left: 20px;">(I)</div> </div> <p>(57) Zusammenfassung</p> <p>Die Erfindung betrifft neue, substituierte, heteroanellierte Imidazole der allgemeinen Formel (I), in welcher R¹, R², R³, A¹, A², A³ und A⁴ die in der Beschreibung angegebenen Bedeutungen haben, ein Verfahren zu ihrer Herstellung sowie ihre Verwendung als Herbizide.</p> | | |

CL

LEDIGLICH ZUR INFORMATION

Codes zur Identifizierung von PCT-Vertragsstaaten auf den Kopfbögen der Schriften, die internationale Anmeldungen gemäss dem PCT veröffentlichen.

| | | | | | |
|----|------------------------------|----|-----------------------------------|----|--------------------------------|
| AT | Österreich | GA | Gabon | MR | Mauritien |
| AU | Australien | GB | Vereinigtes Königreich | MW | Malawi |
| BB | Barbados | GE | Georgien | NE | Niger |
| BE | Belgien | GN | Guinea | NL | Niederlande |
| BF | Burkina Faso | GR | Griechenland | NO | Norwegen |
| BG | Bulgarien | HU | Ungarn | NZ | Neuseeland |
| BJ | Benin | IE | Irland | PL | Polen |
| BR | Brasilien | IT | Italien | PT | Portugal |
| BY | Belarus | JP | Japan | RO | Rumänien |
| CA | Kanada | KE | Kenya | RU | Russische Föderation |
| CF | Zentralafrikanische Republik | KG | Kirgisistan | SD | Sudan |
| CG | Kongo | KP | Demokratische Volksrepublik Korea | SE | Schweden |
| CH | Schweiz | KR | Republik Korea | SI | Slowenien |
| CI | Côte d'Ivoire | KZ | Kasachstan | SK | Slowakei |
| CM | Kamerun | LI | Liechtenstein | SN | Senegal |
| CN | China | LE | Sri Lanka | TD | Tschad |
| CS | Tschechoslowakei | LU | Luxemburg | TG | Togo |
| CZ | Tschechische Republik | LV | Lettland | TJ | Tadschikistan |
| DE | Deutschland | MC | Monaco | TT | Trinidad und Tobago |
| DK | Dänemark | MD | Republik Moldau | UA | Ukraine |
| ES | Spanien | MG | Madagaskar | US | Vereinigte Staaten von Amerika |
| FI | Finnland | ML | Mali | UZ | Usbekistan |
| FR | Frankreich | MW | Mogethi | VN | Vietnam |

WO 94/22859

PCT/EP94/00786

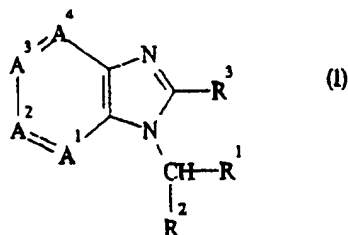
- 1 -

SUBSTITUIERTE, HETEROANELLIERTE IMIDAZOLE UND IHRE VERWENDUNG ALS HERBIZIDE

Die Erfindung betrifft neue substituierte, heteroanellierte Imidazole, ein Verfahren zu
5 ihrer Herstellung sowie ihre Verwendung als Herbizide.

Es ist bekannt, daß bestimmte Benzimidazole insektizide Eigenschaften besitzen, jedoch ist über die Verwendung von heteroanellierten Imidazolen als Herbizide noch nichts bekannt geworden.

Es wurden nun neue substituierte, heteroanellierte Imidazole der allgemeinen Formel
10 (I),



in welcher

R¹ für Wasserstoff oder für einen geradkettigen oder verzweigten, jeweils
gegebenenfalls unsubstituierten oder substituierten Rest der Reihe Alkyl, Alkoxy
15 oder Aryl steht,

R² für Hydroxy, Cyano oder für einen geradkettigen oder verzweigten, jeweils
gegebenenfalls unsubstituierten oder substituierten Rest der Reihe Alkyl,
Alkanyl, Alkynyl, Alkoxy, Alkenyloxy, Alkinyloxy, Alkylthio, Amino, Aminocar-
bonyl, Alkylcarbonyl, Alkoxy carbonyl, Alkylcarbonyloxy, Dialkoxyposphonyl,
20 (Hetero)Aryl, (Hetero)Arylcarbonyl, (Hetero)Aryloxy carbonyl, (Hetero)Aryl-
carbonyloxy oder (Hetero)Arylaminocarbonylaminocarbonyloxy steht,

WO 94/22859

PCT/EP94/00786

- 2 -

R^3 für Cyano, Halogen oder für einen geradkettigen oder verzweigten jeweils gegebenenfalls unsubstituierten oder substituierten Rest der Reihe Alkyl, Alkenyl, Alkynyl, Alkylcarbonyl, Alkoxycarbonyl, Alkylcarbonyloxy, Alkenyloxy, Alkoxy, Alkinyloxy, Amino, Aminocarbonyl oder Aryl steht,

- 5 A^1 , A^2 , A^3 und A^4 für jeweils gegebenenfalls N(Stickstoff), N-CHR¹R² oder CX stehen, wobei mindestens ein, jedoch höchstens zwei Stickstoffatome im heteroanellierten Ring gleichzeitig vorkommen und dabei alle Stellungsisomere möglich sind, so daß

CX¹, CX², CX³ bei einem Stickstoffatom und

- 10 CX¹ und CX² bei zwei Stickstoffatomen vorliegen, und wenn entweder A^1 , A^2 , A^3 oder A^4 für N-CHR¹R² stehen, der Imidazolring lediglich monosubstituiert (R^3) vorliegt,

worin

- 15 X^1 , X^2 und X^3 jeweils unabhängig voneinander für Wasserstoff, Halogen, Cyano, Nitro oder für einen geradkettigen oder verzweigten, jeweils gegebenenfalls unsubstituierten oder substituierten Rest der Reihe Alkyl, Alkoxy, Alkylthio, Alkylsulfinyl, Alkylsulfonyl oder Cycloalkyl, für Hydroxycarbonyl, Alkylcarbonyl, Alkoxycarbonyl, Cycloalkyloxy, für jeweils gegebenenfalls substituiertes Amino oder Aminocarbonyl, oder für jeweils gegebenenfalls substituiertes
- 20 Aryl, Aryloxy, Arylthio, Arylsulfinyl, Arylsulfonyl, Arylsulfonyloxy, Arylcarbonyl, Aryloxycarbonyl, Arylazo oder Arylthiomethylsulfonyl stehen, wobei jedoch mindestens einer der Substituenten X^1 , X^2 oder X^3 für Halogenalkyl, Halogenalkoxy, Halogenalkylthio, Halogenalkylsulfinyl, Halogenalkylsulfonyl, Alkylsulfonyl, für gegebenenfalls substituiertes, ankondensiertes Dioxyalkylen,
- 25 für Hydroxycarbonyl, Alkylcarbonyl, Alkoxycarbonyl, Cycloalkyloxy, für jeweils gegebenenfalls substituiertes Amino oder Aminocarbonyl oder für jeweils gegebenenfalls substituiertes Aryl, Arylthio, Arylsulfinyl, Arylsulfonyl,

WO 94/22859

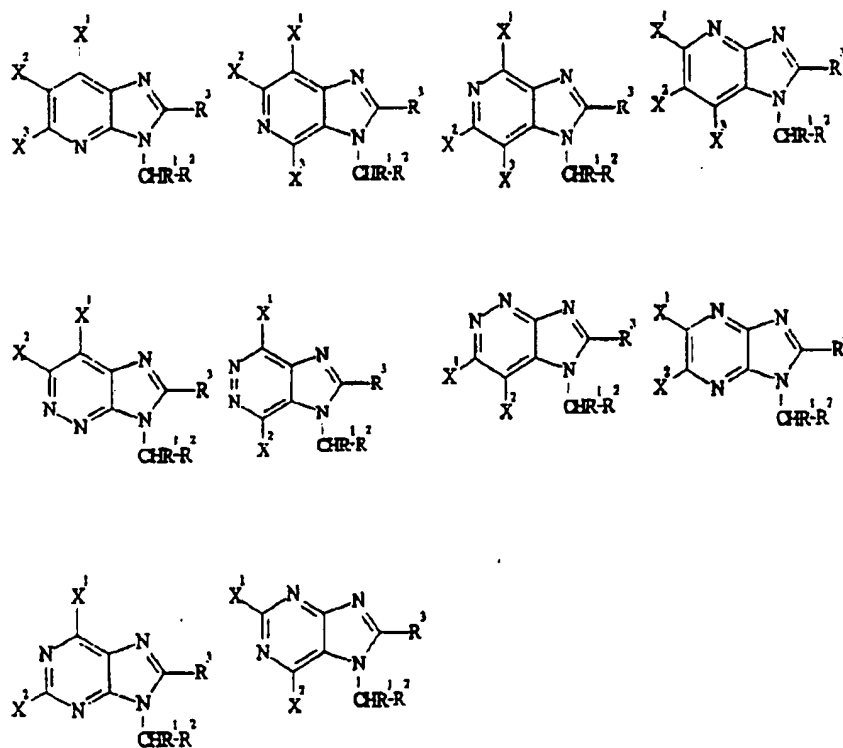
PCT/EP94/00786

- 3 -

Arylsulfonyloxy, Arylcarbonyl, Aryloxycarbonyl, Arylazo oder Arylthiomethylsulfonyl steht,

gefunden.

- Die Verbindungen der Formel (I) können gegebenenfalls in Abhängigkeit von der Art und Anzahl der Substituenten als geometrische und/oder optische Isomere bzw. Regioisomere oder deren Isomerengemische in unterschiedlicher Zusammensetzung, aber auch als Stellungsomere zum Beispiel in den folgenden Variationen vorliegen:

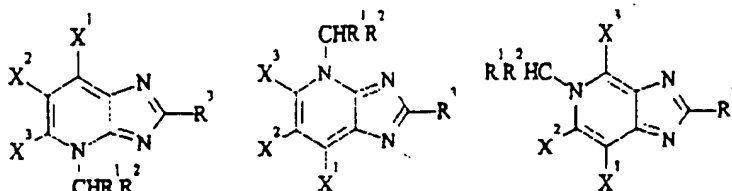


WO 94/22859

PCT/EP94/00786

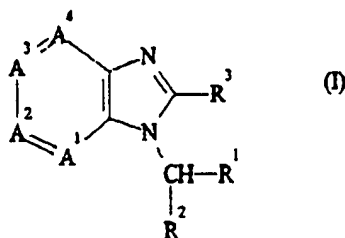
- 4 -

oder zum Beispiel auch folgende Variationen infrage kommen können:



Weiterhin wurde gefunden, daß man die neuen substituierten, heteroanellierten

5 Imidazole der allgemeinen Formel (I),



in welcher

- 10 R^1 für Wasserstoff oder für einen geradkettigen oder verzweigten, jeweils gegebenenfalls unsubstituierten oder substituierten Rest der Reihe Alkyl, Alkoxy oder Aryl steht,
- 15 R^2 für Hydroxy, Cyano oder für einen geradkettigen oder verzweigten, jeweils gegebenenfalls unsubstituierten oder substituierten Rest der Reihe Alkyl, Alkenyl, Alkynyl, Alkoxy, Alkenyloxy, Alkynyloxy, Alkylthio, Amino, Aminocarbonyl, Alkylcarbonyl, Alkoxy carbonyl, Alkylcarbonyloxy, Dialkoxyposphonyl, (Hetero)Aryl, (Hetero)Arylcarbonyl, (Hetero)Aryloxy carbonyl, (Hetero)-Arylcarbonyloxy oder (Hetero)Arylamino carbonylaminocarbonyloxy steht,
- R^3 für Cyano, Halogen oder für einen geradkettigen oder verzweigten jeweils gegebenenfalls unsubstituierten oder substituierten Rest der Reihe Alkyl,

- 5 -

Alkenyl, Alkynyl, Alkylcarbonyl, Alkoxycarbonyl, Alkylcarbonyloxy, Alkenyl-
oxy, Alkoxy, Alkynyloxy, Amino, Aminocarbonyl oder Aryl steht,

A¹, A², A³ und A⁴ für jeweils gegebenenfalls N(Stickstoff), N-CHR¹R² oder CX stehen, wobei mindestens ein, jedoch höchstens zwei Stickstoffatome im heteroanellierten Ring gleichzeitig vorkommen und dabei alle Stellungsisomere möglich sind, so daß

CX^1, CX^2, CX^3 bei einem Stickstoffatom und

10 CX¹ und CX² bei zwei Stickstoffatomen vorliegen und wenn entweder A¹, A², A³ oder A⁴ für N-CHR¹R² stehen, der Imidazolring lediglich monosubstituiert (R³) vorliegt,

Worin

X^1 , X^2 und X^3 jeweils unabhängig voneinander für Wasserstoff, Halogen, Cyano, Nitro oder für einen geradkettigen oder verzweigten, jeweils gegebenenfalls unsubstituierten oder substituierten Rest der Reihe Alkyl, Alkoxy, Alkylthio, Alkylsulfinyl, Alkylsulfonyl oder Cycloalkyl, für Hydroxycarbonyl, Alkylcarbonyl, Alkoxycarbonyl, Cycloalkyloxy-carbonyl, für jeweils gegebenenfalls substituiertes Amino oder Aminocarbonyl, oder für jeweils gegebenenfalls substituiertes Aryl, Aryloxy, Arythio, Arylsulfinyl, Arylsulfonyl, Arylsulfonyloxy, Arylcarbonyl, Aryloxy-carbonyl, Arylazo oder Arylthiomethylsulfonyl stehen, wobei jedoch mindestens einer der Substituenten X^1 , X^2 oder X^3 für Halogenalkyl, Halogenalkoxy, Halogenalkylthio, Halogenalkylsulfinyl, Halogenalkylsulfonyl, Alkylsulfonyl, für gegebenenfalls substituiertes, ankondensiertes Dioxyalkylen, für Hydroxycarbonyl, Alkylcarbonyl, Alkoxycarbonyl, Cycloalkyloxy-carbonyl, für jeweils gegebenenfalls substituiertes Amino oder Aminocarbonyl oder für jeweils gegebenenfalls substituiertes Aryl, Arylthio, Arylsulfinyl, Arylsulfonyl, Arylsulfonyloxy, Arylcarbonyl, Aryloxy-carbonyl, Arylazo oder Arylthiomethylsulfonyl steht.

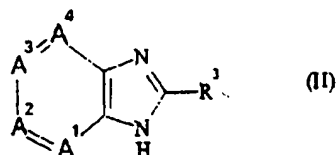
WO 94/22859

PCT/EP94/00786

- 6 -

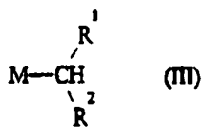
erhält, wenn man

- a) substituierte 1H-heteroanellierte Imidazole der Formel (II),



in welcher

- 5 A¹, A², A³, A⁴ und R³ die oben angegebenen Bedeutungen haben,
mit Verbindungen der Formel (III),



in welcher

M für eine geeignete Abgangsgruppe steht,

- 10 R¹ und R² die oben angegebenen Bedeutungen haben

gegebenenfalls in Gegenwart eines Verdünnungsmittels und gegebenenfalls in Gegenwart eines Reaktionshilfsmittels umsetzt.

Schließlich wurde gefunden, daß die neuen substituierten, heteroanellierten Imidazole der allgemeinen Formel (I) gute Wirksamkeit als Herbizide besitzen.

- 15 Überraschenderweise zeigen die erfindungsgemäßen neuen substituierten, heteroanellierten Imidazole der allgemeinen Formel (I) eine erhebliche herbizide Wirksamkeit gegenüber Problemunkräutern und gleichzeitig eine vergleichbar gute Verträglichkeit gegenüber wichtigen Kulturpflanzen.

WO 94/22859

PCT/EP94/00786

- 7 -

Die erfindungsgemäßen substituierten, heteroanellierten Imidazole sind durch die Formel (I) allgemein definiert. Bevorzugt sind Verbindungen der Formel (I), bei welchen

- 5 R¹ für Wasserstoff oder für einen geradkettigen oder verzweigten, jeweils gegebenenfalls unsubstituierten oder substituierten Rest der Reihe Alkyl, Alkoxy mit jeweils 1 bis 8 Kohlenstoffatomen oder für gegebenenfalls einfach oder mehrfach, gleich oder verschieden substituiertes Phenyl steht, wobei als Substituenten infrage kommen:
- 10 Halogen, Cyano, Nitro, jeweils geradkettiges oder verzweigtes Alkyl, Alkoxy, Alkylthio, Alkylsulfinyl oder Alkylsulfonyl mit jeweils 1 bis 6 Kohlenstoffatomen, jeweils geradkettiges oder verzweigtes Halogenalkyl, Halogenalkoxy, Halogenalkylthio, Halogenalkylsulfinyl oder Halogenalkylsulfonyl mit jeweils 1 bis 6 Kohlenstoffatomen und 1 bis 13 gleichen oder verschiedenen Halogenatomen, jeweils geradkettiges oder verzweigtes Alkoxyalkyl, Alkoxyalkoxy, Alkanoyl, 15 Alkoxycarbonyl oder Alkoximinoalkyl mit jeweils 1 bis 6 Kohlenstoffatomen in den einzelnen Alkylteilen, gegebenenfalls einfach oder mehrfach, gleich oder verschieden durch Halogen und/oder geradkettiges oder verzweigtes Alkyl mit 1 bis 6 Kohlenstoffatomen und/oder geradkettiges oder verzweigtes Halogenalkyl mit 1 bis 6 Kohlenstoffatomen und 1 bis 13 gleichen oder verschiedenen Halogenatomen substituiertes, zweifach verknüpftes Dioxyalkylen mit 1 bis 5 Kohlenstoffatomen oder gegebenenfalls einfach oder mehrfach, gleich oder verschieden durch Halogen und/oder geradkettiges oder verzweigtes Alkyl mit 1 bis 6 Kohlenstoffatomen und/oder geradkettiges oder verzweigtes Halogenalkyl mit 1 bis 6 Kohlenstoffatomen und 1 bis 13 gleichen oder verschiedenen Halogenatomen substituiertes Phenyl, 20 25
- R² für Hydroxy, Cyano oder für einen geradkettigen oder verzweigten und jeweils gegebenenfalls einfach oder mehrfach, gleich oder verschieden substituierten Rest der Reihe Alkyl, Alkenyl, Alkynyl, Alkoxy, Alkenyloxy, Alkynyloxy, Alkylthio, Alkylcarbonyl, Alkoxycarbonyl, Alkylcarbonyloxy oder Dialkoxylphosphonyl mit jeweils bis zu 8 Kohlenstoffatomen in den einzelnen Alkyl bzw. 30

WO 94/22859

PCT/E194/00786

- 8 -

Alkenyl oder Alkinylteilen steht, wobei als Substituenten jeweils infrage kommen:

5 Fluor, Chlor, Brom, Iod, geradkettiges oder verzweigtes Alkoxy mit 1 bis 8 Kohlenstoffatomen oder jeweils gegebenenfalls einfach oder mehrfach, gleich oder verschieden substituiertes Aryl mit 6 bis 10 Kohlenstoffatomen oder Heteroaryl mit 2 bis 9 Kohlenstoffatomen und 1 bis 5 Heteroatomen - insbesondere Stickstoff, Sauerstoff und/oder Schwefel - steht, wobei als Aryl- bzw. Heteroarylsubstituenten die bei R¹ genannten infrage kommen,

10 R² außerdem für jeweils gegebenenfalls einfach oder zweifach, gleich oder verschieden substituiertes Amino oder Aminocarbonyl steht, wobei als Substituenten jeweils infrage kommen:

15 Formyl, geradkettiges oder verzweigtes Alkyl mit 1 bis 8 Kohlenstoffatomen, geradkettiges oder verzweigtes Alkenyl mit 2 bis 8 Kohlenstoffatomen, geradkettiges oder verzweigtes Alkylsulfonyl mit 1 bis 8 Kohlenstoffatomen, jeweils gegebenenfalls einfach oder zweifach, gleich oder verschieden durch geradkettiges oder verzweigtes Alkyl mit 1 bis 8 Kohlenstoffatomen substituiertes Carbamoyl, Thiocarbamoyl oder Sulfamoyl, Cycloalkyl, Cycloalkylcarbonyl oder Cycloalkyloxycarbonyl mit jeweils 3 bis 8 Kohlenstoffatomen im Cycloalkylteil, Alkylcarbonyl, Alkenylcarbonyl, Alkoxycarbonyl, Alkenyloxycarbonyl, Alkylthio-carbonyl, Alkoxy-thiocarbonyl oder Alkylthio-thiocarbonyl mit jeweils 1 bis 20 8 Kohlenstoffatomen in den einzelnen geradkettigen oder verzweigten Alkylteilen, jeweils zweifach verknüpftes und ringgeschlossenes Alkandiyldicarbonyl oder Alkandiyldioxycarbonyl mit jeweils 2 bis 6 Kohlenstoffatomen im Alkandiyldicarbonylteil, jeweils gegebenenfalls im Arylteil einfach oder mehrfach, gleich oder verschieden substituiertes Arylalkyl, Arylalkyldicarbonyl oder Arylalkyldioxycarbonyl mit 25 jeweils 6 bis 10 Kohlenstoffatomen im Arylteil und 1 bis 8 Kohlenstoffatomen im geradkettigen oder verzweigten Alkylteil oder jeweils gegebenenfalls im Arylteil einfach oder mehrfach, gleich oder verschieden substituiertes Aryl, Aryldicarbonyl oder Aryldioxycarbonyl mit jeweils 6 bis 10 Kohlenstoffatomen im Arylteil, wobei als Arylschubstituenten jeweils die bei R¹ genannten infrage kommen,

30

WO 94/22859

PCT/EP94/00786

- 9 -

- 5 R^2 außerdem für jeweils gegebenenfalls einfach oder mehrfach, gleich oder verschieden substituiertes Aryl, Arylcarbonyl, Aryloxycarbonyl, Arylcarbonyloxy oder Arylaminocarbonylaminocarbonyloxy mit jeweils 6 bis 10 Kohlenstoffatomen im Arylteil steht, wobei als Arylsubstituenten jeweils die bei R^1 genannten infrage kommen,
- 10 R^2 außerdem für jeweils gegebenenfalls einfach oder mehrfach, gleich oder verschieden substituiertes Heteroaryl, Heteroarylcarbonyl, Heteroaryloxycarbonyl, Heteroarylcarbonyloxy oder Heteroarylaminocarbonylaminocarbonyloxy mit jeweils 2 bis 9 Kohlenstoffatomen und 1 bis 5 gleichen oder verschiedenen Heteroatomen - insbesondere Stickstoff, Sauerstoff und/oder Schwefel - im Heteroarylteil steht, wobei als Heteroarylsubstituenten jeweils die bei R^1 genannten Arylsubstituenten infrage kommen,
- 15 R^3 für Cyano, Fluor, Chlor, Brom, Iod oder für einen geradkettigen oder verzweigten, jeweils gegebenenfalls unsubstituierten oder substituierten Rest der Reihe Cycloalkyl, Alkyl, Alkenyl, Alkynyl, Alkylcarbonyl, Alkoxy, Alkylcarbonyloxy, Alkenyloxy, Alkoxy, Alkenyloxy mit jeweils bis zu 8 Kohlenstoffatomen in den einzelnen Alkyl, Alkenyl oder Alkynylteilen, wobei als Substituenten jeweils infrage kommen: Fluor, Chlor, Brom, Iod, geradkettiges oder verzweigtes Alkoxy mit 1 bis 8 Kohlenstoffatomen oder jeweils
- 20 gegebenfalls einfach oder mehrfach, gleich oder verschieden substituiertes Aryl mit 6 bis 10 Kohlenstoffatomen oder Heteroaryl mit 2 bis 9 Kohlenstoffatomen und 1 bis 5 Heteroatomen - insbesondere Stickstoff, Sauerstoff und/oder Schwefel - steht, wobei als Aryl bzw. Heteroarylsubstituenten die bei R^1 genannten infrage kommen,
- 25 R^3 außerdem für jeweils gegebenenfalls einfach oder zweifach, gleich oder verschieden substituiertes Amino oder Aminocarbonyl steht, wobei als Substituenten jeweils infrage kommen:
- 30 Formyl, geradkettiges oder verzweigtes Alkyl mit 1 bis 8 Kohlenstoffatomen, geradkettiges oder verzweigtes Alkenyl mit 2 bis 8 Kohlenstoffatomen, geradkettiges oder verzweigtes Alkylsulfonyl mit 1 bis 8 Kohlenstoffatomen, jeweils

WO 94/22859

PCT/EP94/00786

- 10 -

gegebenenfalls einfach oder zweifach, gleich oder verschieden durch geradkettiges oder verzweigtes Alkyl mit 1 bis 8 Kohlenstoffatomen substituiertes Carbamoyl, Thiocarbamoyl oder Sulfamoyl, Cycloalkyl, Cycloalkylcarbonyl oder Cycloalkyloxycarbonyl mit jeweils 3 bis 8 Kohlenstoffatomen im Cycloalkylteil, Alkylcarbonyl, Alkenylcarbonyl, Alkoxycarbonyl, Alkenyloxycarbonyl, Alkylthio-carbonyl, Alkoxy-thiocarbonyl oder Alkylthio-thiocarbonyl mit jeweils 1 bis 8 Kohlenstoffatomen in den einzelnen geradkettigen oder verzweigten Alkylteilen, jeweils zweifach verknüpftes und ringgeschlossenes Alkandiy carbonyl oder Alkandiyloxycarbonyl mit jeweils 2 bis 6 Kohlenstoffatomen im Alkandiyteil, jeweils gegebenenfalls im Arylteil einfach oder mehrfach, gleich oder verschieden substituiertes Arylalkyl, Arylalkylcarbonyl oder Arylalkyloxycarbonyl mit jeweils 6 bis 10 Kohlenstoffatomen im Arylteil und 1 bis 8 Kohlenstoffatomen im geradkettigen oder verzweigten Alkylteil oder jeweils gegebenenfalls im Arylteil einfach oder mehrfach, gleich oder verschieden substituiertes Aryl, Arylcarbonyl oder Aryloxycarbonyl mit jeweils 6 bis 10 Kohlenstoffatomen im Arylteil, wobei als Arylsubstituenten jeweils die bei R¹ genannten infrage kommen,

R³ außerdem für jeweils gegebenenfalls einfach oder mehrfach, gleich oder verschieden substituiertes Aryl, mit jeweils 6 bis 10 Kohlenstoffatomen im Arylteil steht, wobei als Arylsubstituenten jeweils die bei R¹ genannten infrage kommen,

A¹, A², A³ und A⁴ für jeweils gegebenenfalls N(Stickstoff), N-CHR¹R² oder CX stehen, wobei mindestens ein, jedoch höchstens zwei Stickstoffatome gleichzeitig im heteroanellierten Ring gleichzeitig vorkommen und dabei alle Stellungsisomere möglich sind, so daß

25 CX¹, CX², CX³ bei einem Stickstoffatom und

CX¹ und CX² bei zwei Stickstoffatomen vorliegen und wenn entweder A¹, A², A³ oder A⁴ für N-CHR¹R² stehen, der Imidazolring lediglich monosubstituiert (R³) vorliegt und

30 X¹, X², X³ jeweils unabhängig voneinander für Wasserstoff, Fluor, Chlor, Brom, Iod, Cyano, Nitro, für jeweils geradkettiges oder verzweigtes Alkyl, Alkoxy,

WO 94/22839

PCT/EP94/00786

- 11 -

Alkylthio, Alkylsulfinyl oder Alkylsulfonyl mit jeweils 1 bis 8 Kohlenstoffatomen, für Cycloalkyl mit 3 bis 8 Kohlenstoffatomen, für jeweils geradkettiges oder verzweigtes Halogenalkyl, Halogenalkoxy, Halogenalkylthio, Halogenalkylsulfinyl, Halogenalkylsulfonyl mit jeweils 1 bis 6 Kohlenstoffatomen und 1 bis 13 gleichen oder verschiedenen Halogenatomen oder für gegebenenfalls einfach oder mehrfach, gleich oder verschieden durch Halogen und/oder geradkettiges oder verzweigtes Alkyl mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen und/oder geradkettiges oder verzweigtes Halogenalkyl mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen und 1 bis 9 gleichen oder verschiedenen Halogenatomen substituiertes, zweifach verknüpftes Dioxyalkylen mit 1 bis 5 Kohlenstoffatomen stehen, außerdem für Hydroxycarbonyl, für jeweils geradkettiges oder verzweigtes Alkylcarbonyl oder Alkoxycarbonyl mit jeweils 1 bis 6 Kohlenstoffatomen im Alkylteil, für Cycloalkyloxy-carbonyl mit 3 bis 8 Kohlenstoffatomen im Cycloalkylteil oder für jeweils gegebenenfalls einfach oder mehrfach, gleich oder verschieden substituiertes Amino oder Aminocarbonyl stehen, wobei als Aminosubstituenten jeweils infrage kommen:

jeweils geradkettiges oder verzweigtes Alkyl mit 1 bis 6 Kohlenstoffatomen, Halogenalkyl mit 1 bis 6 Kohlenstoffatomen und 1 bis 13 Halogenatomen, Alkoxyalkyl oder Alkylcarbonyl mit jeweils 1 bis 6 Kohlenstoffatomen in den einzelnen Alkylteilen oder im Arylteil jeweils gegebenenfalls einfach oder mehrfach, gleich oder verschieden substituiertes Arylcarbonyl, Arylsulfonyl, Arylamino-carbonyl oder Arylmethylsulfonyl mit jeweils 6 bis 10 Kohlenstoffatomen im Arylteil, wobei als Arylsubstituenten jeweils die bei R¹ genannten infrage kommen;

X¹, X², X³ außerdem für jeweils gegebenenfalls im Arylteil einfach oder mehrfach, gleich oder verschieden substituiertes Aryl, Aryloxy, Arylthio, Arylsulfinyl, Arylsulfonyl, Arylsulfonyloxy, Arylcarbonyl, Aryloxycarbonyl, Arylthiomethylsulfonyl oder Arylazo mit jeweils 6 bis 10 Kohlenstoffatomen im Arylteil stehen, wobei als Arylsubstituenten jeweils die bei R¹ genannten infrage kommen und

WO 94/22859

PCT/EP94/00786

- 12 -

wobei mindestens einer der Substituenten X^1 , X^2 oder X^3 für jeweils geradkettiges oder verzweigtes Halogenalkyl Halogenalkoxy, Halogenalkylthio, Halogen-alkylsulfinyl, Halogenalkylsulfonyl mit jeweils 1 bis 6 Kohlenstoffatomen und 1 bis 13 gleichen oder verschiedenen Halogenatomen, für geradkettiges oder verzweigtes Alkylsulfonyl mit 1 bis 6 Kohlenstoffatomen oder für gegebenenfalls einfach oder mehrfach, gleich oder verschieden durch Halogen und/oder geradkettiges oder verzweigtes Alkyl mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen und/oder geradkettiges oder verzweigtes Halogenalkyl mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen und 1 bis 9 gleichen oder verschiedenen Halogenatomen substituiertes, zweifach verknüpftes Dioxyalkylen mit 1 bis 5 Kohlenstoffatomen steht, außerdem für Hydroxycarbonyl, für jeweils geradkettiges oder verzweigtes Alkylcarbonyl oder Alkoxycarbonyl mit jeweils 1 bis 6 Kohlenstoffatomen im Alkylteil, für Cycloalkyloxycarbonyl mit 3 bis 8 Kohlenstoffatomen im Cycloalkylteil oder für jeweils gegebenenfalls einfach oder mehrfach, gleich oder verschieden substituiertes Amino oder Aminocarbonyl steht, wobei als Aminosubstituenten jeweils infrage kommen:

jeweils geradkettiges oder verzweigtes Alkyl mit 1 bis 6 Kohlenstoffatomen, Halogenalkyl mit 1 bis 6 Kohlenstoffatomen und 1 bis 13 Halogenatomen, Alkoxyalkyl oder Alkylcarbonyl mit jeweils 1 bis 6 Kohlenstoffatomen in den einzelnen Alkylteilen oder im Arylteil jeweils gegebenenfalls einfach oder mehrfach, gleich oder verschieden substituiertes Arylcarbonyl, Arylsulfonyl, Arylamino-carbonyl oder Arylmethylsulfonyl mit jeweils 6 bis 10 Kohlenstoffatomen im Arylteil, wobei als Arylsubstituenten jeweils die bei R^1 genannten infrage kommen;

X^1 , X^2 , X^3 außerdem für jeweils gegebenenfalls im Arylteil einfach oder mehrfach, gleich oder verschieden substituiertes Aryl, Arylthio, Arylsulfinyl, Arylsulfonyl, Arylsulfonyloxy, Arylcarbonyl, Aryloxycarbonyl, Arylthiomethylsulfonyl oder Arylazo mit jeweils 6 bis 10 Kohlenstoffatomen im Arylteil stehen, wobei als Arylsubstituenten jeweils die bei R^1 genannten infrage kommen.

Besonders bevorzugt sind Verbindungen der Formel (I), bei welchen

WO 94/22859

PCT/EP94/00786

- 13 -

- R¹ für Wasserstoff, oder für einen jeweils gegebenenfalls unsubstituierten oder substituierten, geradkettigen oder verzweigten Rest der Reihe Alkyl, Alkoxy mit jeweils 1 bis 6 Kohlenstoffatomen oder für gegebenenfalls einfach bis dreifach, gleich oder verschieden substituiertes Phenyl steht, wobei als Substituenten
5 infrage kommen:
- Fluor, Chlor, Brom, Iod, Cyano, Nitro, jeweils geradkettiges oder verzweigtes Alkyl, Alkoxy, Alkylthio, Alkylsulfinyl oder Alkylsulfonyl mit jeweils 1 bis 4 Kohlenstoffatomen, jeweils geradkettiges oder verzweigtes Halogenalkyl, Halogenalkoxy, Halogenalkylthio, Halogenalkylsulfinyl oder Halogenalkylsulfonyl
10 mit jeweils 1 bis 4 Kohlenstoffatomen und 1 bis 9 gleichen oder verschiedenen Halogenatomen, jeweils geradkettiges oder verzweigtes Alkoxyalkyl, Alkoxyalkoxy, Alkanoyl, Alkoxycarbonyl oder Alkoximinoalkyl mit jeweils 1 bis 4 Kohlenstoffatomen in den einzelnen Alkylteilen, gegebenenfalls einfach bis sechsfach, gleich oder verschieden durch Halogen und/oder geradkettiges oder
15 verzweigtes Alkyl mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen und/oder geradkettiges oder verzweigtes Halogenalkyl mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen und 1 bis 9 gleichen oder verschiedenen Halogenatomen substituiertes, zweifach verknüpftes Dioxyalkylen mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen oder gegebenenfalls einfach bis fünf-
20 fache, gleich oder verschieden durch Halogen und/oder geradkettiges oder verzweigtes Alkyl mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen und/oder geradkettiges oder verzweigtes Halogenalkyl mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen und 1 bis 9 gleichen oder verschiedenen Halogenatomen substituiertes Phenyl, wobei Halogen jeweils für Fluor, Chlor, Brom, Iod steht,
- R² für Hydroxy, Cyano oder für einen geradkettigen oder verzweigten jeweils
25 gegebenenfalls einfach bis fünfmal, gleich oder verschieden durch Fluor, Chlor, Brom oder Iod substituierten Rest der Reihe Alkyl, Alkenyl, Alkynyl, Alkoxy, Alkenyloxy, Alkinyloxy, Alkylthio, Alkylcarbonyl, Alkoxycarbonyl, Alkylcarbonyloxy oder Dialkoxyphosphonyl mit jeweils bis zu 6 Kohlenstoffatomen in den einzelnen Alkyl bzw. Alkenyl oder Alkynylteilen oder für jeweils gegebenen-
30 falls einfach bis dreifach, gleich oder verschieden substituiertes Alkyl, Alkenyl, Alkynyl, Alkoxy, Alkenyloxy, Alkinyloxy, Alkylthio, Alkylcarbonyl, Alkoxycarbonyl, Alkylcarbonyloxy oder Dialkoxyphosphonyl mit jeweils bis zu 6 Kohlen-

WO 94/22859

PCT/EP94/00786

- 14 -

stoffatomen in den einzelnen Alkyl bzw. Alkenyl oder Alkinylteilen steht, wobei als Substituenten jeweils infrage kommen:

5 geradkettiges oder verzweigtes Alkoxy mit 1 bis 6 Kohlenstoffatomen oder jeweils gegebenenfalls einfach bis dreifach, gleich oder verschieden substituiertes Aryl mit 6 oder 10 Kohlenstoffatomen oder Heteroaryl mit 2 bis 9 Kohlenstoffatomen und 1 bis 4 Heteroatomen - insbesondere Stickstoff, Sauerstoff und/oder Schwefel - steht, wobei als Aryl- bzw. Heteroarylsubstituenten die bei R¹ genannten infrage kommen,

10 R² außerdem für jeweils gegebenenfalls einfach oder zweifach, gleich oder verschieden substituiertes Amino oder Aminocarbonyl steht, wobei als Substituenten jeweils infrage kommen:

15 Formyl, geradkettiges oder verzweigtes Alkyl mit 1 bis 6 Kohlenstoffatomen, geradkettiges oder verzweigtes Alkenyl mit 2 bis 6 Kohlenstoffatomen, geradkettiges oder verzweigtes Alkylsulfonyl mit 1 bis 6 Kohlenstoffatomen, jeweils gegebenenfalls einfach oder zweifach, gleich oder verschieden durch geradkettiges oder verzweigtes Alkyl mit 1 bis 6 Kohlenstoffatomen substituiertes Carbamoyl, Thiocarbamoyl oder Sulfamoyl, Cycloalkyl, Cycloalkylcarbonyl oder Cycloalkyloxycarbonyl mit jeweils 3 bis 7 Kohlenstoffatomen im Cycloalkylteil, Alkylcarbonyl, Alkenylcarbonyl, Alkoxycarbonyl, Alkenyloxycarbonyl, Alkylthio-carbonyl, Alkoxy-thiocarbonyl oder Alkylthio-thiocarbonyl mit jeweils 1 bis 20 6 Kohlenstoffatomen in den einzelnen geradkettigen oder verzweigten Alkylteilen, jeweils zweifach verknüpft und ringgeschlossenes Alkandiyldicarbonyl oder Alkandiyloxycarbonyl mit jeweils 2 bis 5 Kohlenstoffatomen im Alkandiyldicarbonylteil, jeweils gegebenenfalls im Arylteil einfach bis dreifach, gleich oder verschieden substituiertes Arylalkyl, Arylalkyldicarbonyl oder Arylalkyloxycarbonyl mit jeweils 6 oder 10 Kohlenstoffatomen im Arylteil und 1 bis 6 Kohlenstoffatomen im geradkettigen oder verzweigten Alkylteil oder jeweils gegebenenfalls im Arylteil einfach bis dreifach, gleich oder verschieden substituiertes Aryl, Aryldicarbonyl oder Aryloxycarbonyl mit jeweils 6 oder 10 Kohlenstoffatomen im Arylteil, wobei als Arylsubstituenten jeweils die bei R¹ genannten infrage kommen,

WO 94/22859

PCT/EP94/00786

- 15 -

- 5 R^2 außerdem für jeweils gegebenenfalls einfach bis fünffach, gleich oder verschieden substituiertes Aryl, Arylcarbonyl, Aryloxycarbonyl, Arylcarbonyloxy oder Arylaminocarbonylaminocarbonyloxy mit jeweils 6 oder 10 Kohlenstoffatomen im Arylteil steht, wobei als Arylsubstituenten jeweils die bei R^1 genannten infrage kommen,
- 10 R^2 außerdem für jeweils gegebenenfalls einfach bis fünffach, gleich oder verschieden substituiertes Heteroaryl, Heteroarylcarbonyl, Heteroaryloxycarbonyl, Heteroarylcarbonyloxy oder Heteroarylaminocarbonylaminocarbonyloxy mit jeweils 2 bis 9 Kohlenstoffatomen und 1 bis 4 gleichen oder verschiedenen Heteroatomen - insbesondere Stickstoff, Sauerstoff und/oder Schwefel - im Heteroarylteil steht, wobei als Heteroarylsubstituenten jeweils die bei R^1 genannten Arylsubstituenten infrage kommen,
- 15 R^3 für Cyano, Fluor, Chlor, Brom, Iod oder für einen geradkettigen oder verzweigten, gegebenenfalls einfach bis fünffach, gleich oder verschieden durch Fluor, Chlor, Brom und/oder Iod substituierten Rest der Reihe Alkyl, Alkenyl, Alkynyl, Alkoxy, Alkenyloxy, Alkinyloxy, Alkylthio, Alkylcarbonyl, Alkoxy-carbonyl oder Alkylcarbonyloxy, mit jeweils bis zu 6 Kohlenstoffatomen in den einzelnen Alkyl bzw. Alkenyl oder Alkynylteilen oder für jeweils gegebenenfalls einfach bis dreifach, gleich oder verschieden substituiertes Cycloalkyl, Alkyl, 20 Alkenyl, Alkynyl, Alkoxy, Alkenyloxy, Alkinyloxy, Alkylthio, Alkylcarbonyl, Alkoxy-carbonyl, Alkylcarbonyloxy oder Dialkoxyphosphonyl mit jeweils bis zu 6 Kohlenstoffatomen in den einzelnen Alkyl bzw. Alkenyl oder Alkynylteilen steht, wobei als Substituenten jeweils infrage kommen:
- 25 Fluor, Chlor, Brom, Iod, geradkettiges oder verzweigtes Alkoxy mit 1 bis 6 Kohlenstoffatomen oder jeweils gegebenenfalls einfach bis dreifach, gleich oder verschieden substituiertes Aryl mit 6 oder 10 Kohlenstoffatomen oder Heteroaryl mit 2 bis 9 Kohlenstoffatomen und 1 bis 4 Heteroatomen - insbesondere Stickstoff, Sauerstoff und/oder Schwefel - steht, wobei als Aryl- bzw. Heteroarylsubstituenten die bei R^1 genannten infrage kommen,

WO 94/22859

PCT/EP94/00786

- 16 -

R³ außerdem für jeweils gegebenenfalls einfach oder zweifach, gleich oder verschieden substituiertes Amino oder Aminocarbonyl steht, wobei als Substituenten jeweils infrage kommen:

5 Formyl, geradkettiges oder verzweigtes Alkyl mit 1 bis 6 Kohlenstoffatomen, geradkettiges oder verzweigtes Alkenyl mit 2 bis 6 Kohlenstoffatomen, geradkettiges oder verzweigtes Alkylsulfonyl mit 1 bis 6 Kohlenstoffatomen, jeweils gegebenenfalls einfach oder zweifach, gleich oder verschieden durch geradkettiges oder verzweigtes Alkyl mit 1 bis 6 Kohlenstoffatomen substituiertes Carbamoyl, Thiocarbamoyl oder Sulfamoyl, Cycloalkyl, Cycloalkylcarbonyl oder Cycloalkyloxycarbonyl mit jeweils 3 bis 7 Kohlenstoffatomen im Cycloalkylteil, Alkylcarbonyl, Alkenylcarbonyl, Alkoxycarbonyl, Alkenyloxycarbonyl, Alkylthio-carbonyl, Alkoxy-thiocarbonyl oder Alkylthio-thiocarbonyl mit jeweils 1 bis 10 6 Kohlenstoffatomen in den einzelnen geradkettigen oder verzweigten Alkylteilen, jeweils zweifach verknüpft und ringgeschlossenes Alkandiyldcarbonyl oder Alkandiyloxycarbonyl mit jeweils 2 bis 5 Kohlenstoffatomen im Alkandiyteil, jeweils gegebenenfalls im Arylteil einfach bis dreifach, gleich oder verschieden substituiertes Arylalkyl, Arylalkylcarbonyl oder Arylalkyloxycarbonyl mit jeweils 6 oder 10 Kohlenstoffatomen im Arylteil und 1 bis 6 Kohlenstoffatomen im geradkettigen oder verzweigten Alkylteil oder jeweils gegebenenfalls im 20 Arylteil einfach bis dreifach, gleich oder verschieden substituiertes Aryl, Arylcarbonyl oder Aryloxycarbonyl mit jeweils 6 oder 10 Kohlenstoffatomen im Arylteil, wobei als Arylsubstituenten jeweils die bei R¹ genannten infrage kommen,

25 R³ außerdem für jeweils gegebenenfalls einfach bis fünffach, gleich oder verschieden substituiertes Aryl, mit jeweils 6 oder 10 Kohlenstoffatomen im Arylteil steht, wobei als Arylsubstituenten jeweils die bei R¹ genannten infrage kommen,

30 A¹, A², A³ und A⁴ für jeweils gegebenenfalls N(Stickstoff), N-CHR¹R² oder CX stehen, wobei mindestens ein, jedoch höchstens zwei Stickstoffatome gleichzeitig im heteroanellierten Ring gleichzeitig vorkommen und dabei alle Stellungsisomere möglich sind, so daß

WO 94/22859

PCT/EP94/00786

- 18 -

X¹, X², X³ außerdem für jeweils gegebenenfalls im Arylteil einfach bis fünffach, gleich oder verschieden substituiertes Aryl, Aryloxy, Arylthio, Arylsulfinyl, Arylsulfonyl, Arylsulfonyloxy, Arylcarbonyl, Aryloxycarbonyl, Arylthiomethylsulfonyl oder Arylazo mit jeweils 6 oder 10 Kohlenstoffatomen im Arylteil stehen, wobei als Arylsubstituenten jeweils die bei R¹ genannten infrage kommen und

wobei mindestens einer der Substituenten X¹, X², X³ für jeweils geradkettiges oder verzweigtes Halogenalkyl, Halogenalkoxy, Halogenalkylthio, Halogenalkylsulfinyl, Halogenalkylsulfonyl mit jeweils 1 bis 4 Kohlenstoffatomen und 1 bis 9 gleichen oder verschiedenen Halogenatomen, für geradkettiges oder verzweigtes Alkylsulfonyl mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen oder für gegebenenfalls einfach bis sechsfach, gleich oder verschieden durch Halogen und/oder geradkettiges oder verzweigtes Alkyl mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen und/oder geradkettiges oder verzweigtes Halogenalkyl mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen und 1 bis 9 gleichen oder verschiedenen Halogenatomen substituiertes, zweifach verknüpftes Dioxyalkylen mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen steht, außerdem für Hydroxycarbonyl, für jeweils geradkettiges oder verzweigtes Alkylcarbonyl oder Alkoxycarbonyl mit jeweils 1 bis 4 Kohlenstoffatomen im Alkylteil, für Cycloalkyloxycarbonyl mit 3 bis 7 Kohlenstoffatomen im Cycloalkylteil oder für jeweils gegebenenfalls einfach oder zweifach, gleich oder verschieden substituiertes Amino oder Aminocarbonyl steht, wobei als Aminosubstituenten jeweils infrage kommen:

jeweils geradkettiges oder verzweigtes Alkyl mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen, Halogenalkyl mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen und 1 bis 9 Halogenatomen, Alkoxyalkyl oder Alkylcarbonyl mit jeweils 1 bis 4 Kohlenstoffatomen in den einzelnen Alkylteilen oder im Arylteil jeweils gegebenenfalls einfach bis fünffach, gleich oder verschieden substituiertes Arylcarbonyl, Arylsulfonyl, Arylamino-carbonyl oder Arylmethylsulfonyl mit jeweils 6 oder 10 Kohlenstoffatomen im Arylteil, wobei als Arylsubstituenten jeweils die bei R¹ genannten infrage kommen;

WO 94/22859

PCT/EP94/00786

- 19 -

X¹, X², X³ außerdem für jeweils gegebenenfalls im Arylteil einfach bis fünffach, gleich oder verschieden substituiertes Aryl, Arylthio, Arylsulfinyl, Arylsulfonyl, Arylsulfonyloxy, Arylcarbonyl, Aryloxycarbonyl, Arylthiomethylsulfonyl oder Arylazo mit jeweils 6 oder 10 Kohlenstoffatomen im Arylteil wie Phenyl oder Naphthyl stehen, wobei als Arylsubstituenten jeweils die bei R¹ genannten infrage kommen.

Ganz besonders bevorzugt sind Verbindungen der Formel (I), bei welchen

R¹ für Wasserstoff oder für einen jeweils gegebenenfalls unsubstituierten oder substituierten geradkettigen oder verzweigten Rest der Reihe Alkyl, Alkoxy mit jeweils 1 bis 4 Kohlenstoffatomen oder für gegebenenfalls einfach oder zweifach, gleich oder verschieden substituiertes Phenyl steht, wobei als Substituenten infrage kommen:

Fluor, Chlor, Brom, Cyano, Nitro, jeweils geradkettiges oder verzweigtes Alkyl, Alkoxy, Alkylthio, Alkylsulfinyl oder Alkylsulfonyl mit jeweils 1 bis 3 Kohlenstoffatomen, jeweils geradkettiges oder verzweigtes Halogenalkyl, Halogenalkoxy, Halogenalkylthio, Halogenalkylsulfinyl oder Halogenalkylsulfonyl mit jeweils 1 bis 3 Kohlenstoffatomen und 1 bis 7 gleichen oder verschiedenen Halogenatomen, jeweils geradkettiges oder verzweigtes Alkoxyalkyl, Alkoxyalkoxy, Alkanoyl, Alkoxycarbonyl oder Alkoximinoalkyl mit jeweils 1 bis 3 Kohlenstoffatomen in den einzelnen Alkylteilen, gegebenenfalls einfach bis vierfach, gleich oder verschieden durch Halogen und/oder geradkettiges oder verzweigtes Alkyl mit 1 bis 3 Kohlenstoffatomen und/oder geradkettiges oder verzweigtes Halogenalkyl mit 1 bis 3 Kohlenstoffatomen und 1 bis 7 gleichen oder verschiedenen Halogenatomen substituiertes, zweifach verknüpftes Dioxyalkylen mit 1 bis 3 Kohlenstoffatomen oder gegebenenfalls einfach bis dreifach, gleich oder verschieden durch Halogen und/oder geradkettiges oder verzweigtes Alkyl mit 1 bis 3 Kohlenstoffatomen und/oder geradkettiges oder verzweigtes Halogenalkyl mit 1 bis 3 Kohlenstoffatomen und 1 bis 7 gleichen oder verschiedenen Halogenatomen substituiertes Phenyl, wobei Halogen jeweils für Fluor, Chlor, Brom steht,

WO 94/22859

PCT/EP94/00786

- 20 -

- 5 R² für Hydroxy, Cyano oder für einen geradkettigen oder verzweigten jeweils gegebenenfalls einfach bis vierfach, gleich oder verschieden durch Fluor, Chlor und/oder Brom substituierten Rest der Reihe Alkyl, Alkenyl, Alkynyl, Alkoxy, Alkenyloxy, Alkinyloxy, Alkylthio, Alkylcarbonyl, Alkoxycarbonyl, Alkylcarbonyloxy oder Dialkoxyposphonyl mit jeweils bis zu 4 Kohlenstoffatomen in den einzelnen Alkyl bzw. Alkenyl oder Alkynylteilen steht, oder für jeweils
10 gegebenenfalls einfach oder zweifach, gleich oder verschieden substituiertes Alkyl, Alkenyl, Alkynyl, Alkoxy, Alkenyloxy, Alkinyloxy, Alkylthio, Alkylcarbonyl, Alkoxycarbonyl, Alkylcarbonyloxy oder Dialkoxyposphoryl mit jeweils bis zu 4 Kohlenstoffatomen in den einzelnen Alkyl bzw. Alkenyl oder Alkynylteilen steht, wobei als Substituenten jeweils infrage kommen:

geradkettiges oder verzweigtes Alkoxy mit 1 bis 3 Kohlenstoffatomen oder gegebenenfalls einfach oder zweifach, gleich oder verschieden substituiertes Phenyl, wobei als Phenylsubstituenten die bei R¹ genannten infrage kommen,

- 15 R² außerdem für jeweils gegebenenfalls einfach oder zweifach, gleich oder verschieden substituiertes Amino oder Aminocarbonyl steht, wobei als Substituenten jeweils infrage kommen:

- 20 Formyl, geradkettiges oder verzweigtes Alkyl mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen, geradkettiges oder verzweigtes Alkenyl mit 2 bis 4 Kohlenstoffatomen, geradkettiges oder verzweigtes Alkylsulfonyl mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen, jeweils gegebenenfalls einfach oder zweifach, gleich oder verschieden durch geradkettiges oder verzweigtes Alkyl mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen substituiertes Carbamoyl, Thiocarbamoyl oder Sulfamoyl, Cycloalkyl, Cycloalkylcarbonyl oder Cycloalkyloxy-carbonyl mit jeweils 3 bis 6 Kohlenstoffatomen im Cycloalkylteil,
25 Alkylcarbonyl, Alkenylcarbonyl, Alkoxycarbonyl, Alkenyloxy-carbonyl, Alkylthio-carbonyl, Alkoxy-thiocarbonyl oder Alkylthio-thiocarbonyl mit jeweils 1 bis 4 Kohlenstoffatomen in den einzelnen geradkettigen oder verzweigten Alkylteilen, jeweils zweifach verknüpft und ringgeschlossenes Alkandiyldicarbonyl oder Alkandiyloxy-carbonyl mit jeweils 2 bis 4 Kohlenstoffatomen im Alkandiyldicarbonylteil,
30 jeweils gegebenenfalls im Phenylteil einfach oder zweifach, gleich oder verschieden substituiertes Phenylalkyl, Phenylalkylcarbonyl oder Phenylalkyloxy-

WO 94/22859

PCT/EP94/00786

- 21 -

- 5 carbonyl mit jeweils 1 bis 4 Kohlenstoffatomen im geradkettigen oder verzweigten Alkylteil oder jeweils gegebenenfalls im Phenylteil einfach oder zweifach, gleich oder verschieden substituiertes Phenyl, Phenylcarbonyl oder Phenylloxycarbonyl, wobei als Phenylsubstituenten jeweils die bei R¹ genannten infrage kommen,
- 10 R² außerdem für jeweils gegebenenfalls einfach bis dreifach, gleich oder verschieden substituiertes Phenyl, Phenylcarbonyl, Phenylloxycarbonyl, Phenylcarbonyloxy oder Phenylaminocarbonylaminocarbonyloxy steht, wobei als Phenylsubstituenten jeweils die bei R¹ genannten infrage kommen,
- 15 R² außerdem für jeweils gegebenenfalls einfach bis dreifach, gleich oder verschieden substituiertes Heteroaryl, Heteroarylcarbonyl, Heteroarylloxycarbonyl, Heteroarylcarbonyloxy oder Heteroarylaminocarbonylaminocarbonyloxy mit jeweils 2 bis 9 Kohlenstoffatomen und 1 bis 3 gleichen oder verschiedenen Heteroatomen - insbesondere Stickstoff, Sauerstoff und/oder Schwefel - im Heteroarylteil steht, wobei als Heteroarylsubstituenten jeweils die bei R¹ genannten Phenylsubstituenten infrage kommen,
- 20 R³ für Cyano, Fluor, Chlor, Brom oder für einen geradkettigen oder verzweigten, gegebenenfalls einfach bis dreifach gleich oder verschieden durch Fluor, Chlor und/oder Brom substituierten Rest der Reihe Alkyl, Alkenyl, Alkynyl, Alkoxy, Alkenyloxy, Alkynyloxy, Alkylthio, Alkylcarbonyl, Alkoxycarbonyl, Alkylcarbonyloxy mit jeweils bis zu 4 Kohlenstoffatomen in den einzelnen Alkyl bzw. Alkenyl oder Alkynylteilen steht, oder für jeweils gegebenenfalls einfach oder zweifach, gleich oder verschieden substituiertes Alkyl, Alkenyl, Alkynyl, Alkoxy, Alkenyloxy, Alkynyloxy, Alkylthio, Alkylcarbonyl, Alkoxycarbonyl, Alkylcarbonyloxy oder Dialkoxyposphoryl mit jeweils bis zu 4 Kohlenstoffatomen in den einzelnen Alkyl bzw. Alkenyl oder Alkynylteilen steht, wobei als Substituenten jeweils infrage kommen:
- 25 geradkettiges oder verzweigtes Alkoxy mit 1 bis 3 Kohlenstoffatomen oder gegebenenfalls einfach oder zweifach, gleich oder verschieden substituiertes Phenyl, wobei als Phenylsubstituenten die bei R¹ genannten infrage kommen,
- 30

WO 94/22859

PCT/EP94/00786

- 22 -

R³ außerdem für jeweils gegebenenfalls einfach oder zweifach, gleich oder verschieden substituiertes Amino oder Aminocarbonyl steht, wobei als Substituenten jeweils infrage kommen:

5 Formyl, geradkettiges oder verzweigtes Alkyl mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen, geradkettiges oder verzweigtes Alkenyl mit 2 bis 4 Kohlenstoffatomen, geradkettiges oder verzweigtes Alkylsulfonyl mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen, jeweils gegebenenfalls einfach oder zweifach, gleich oder verschieden durch geradkettiges oder verzweigtes Alkyl mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen substituiertes Carbamoyl, Thiocarbamoyl oder Sulfamoyl, Cycloalkyl, Cycloalkylcarbonyl oder Cycloalkyloxy-carbonyl mit jeweils 3 bis 6 Kohlenstoffatomen im Cycloalkylteil, Alkylcarbonyl, Alkenylcarbonyl, Alkoxy-carbonyl, Alkenyloxy-carbonyl, Alkylthio-carbonyl, Alkoxy-thiocarbonyl oder Alkylthio-thiocarbonyl mit jeweils 1 bis 10 4 Kohlenstoffatomen in den einzelnen geradkettigen oder verzweigten Alkylteilen, jeweils zweifach verknüpft und ringgeschlossenes Alkandiyloxy-carbonyl oder Alkandiyloxy-carbonyl mit jeweils 2 bis 4 Kohlenstoffatomen im Alkandiyloxy-carbonylteil, jeweils gegebenenfalls im Phenylteil einfach oder zweifach, gleich oder verschieden substituiertes Phenylalkyl, Phenylalkylcarbonyl oder Phenylalkyloxy-carbonyl mit jeweils 1 bis 4 Kohlenstoffatomen im geradkettigen oder verzweigten Alkylteil oder jeweils gegebenenfalls im Phenylteil einfach oder zweifach, 15 gleich oder verschieden substituiertes Phenyl, Phenylcarbonyl oder Phenyloxy-carbonyl, wobei als Phenylsubstituenten jeweils die bei R¹ genannten infrage kommen,

25 R³ außerdem für gegebenenfalls einfach bis dreifach, gleich oder verschieden substituiertes Phenyl, steht, wobei als Phenylsubstituenten jeweils die bei R¹ genannten infrage kommen,

A¹, A², A³ und A⁴ für jeweils gegebenenfalls N(Stickstoff), N-CHR¹R² oder CX stehen, wobei mindestens ein, jedoch höchstens zwei Stickstoffatome gleichzeitig im heteroanellierten Ring vorkommen und dabei alle Stellungsisomere möglich sind, so daß

30 CX¹, CX², CX³ bei einem Stickstoffatom und

WO 94/22859

PCT/EP94/00786

- 23 -

CX¹ und CX² bei zwei Stickstoffatomen vorliegen und wenn entweder A¹, A², A³ oder A⁴ für N-CHR¹R² stehen, der Imidazolring lediglich monosubstituiert (R³) vorliegt, und

5 X¹, X², X³ unabhängig voneinander jeweils für Wasserstoff, Chlor, Brom, Cyano, Nitro, für jeweils geradkettiges oder verzweigtes Alkyl, Alkoxy, Alkylthio, Alkylsulfinyl oder Alkylsulfonyl mit jeweils 1 bis 4 Kohlenstoffatomen, für Cycloalkyl mit 3, 5 oder 6 Kohlenstoffatomen, für jeweils geradkettiges oder verzweigtes Halogenalkyl, Halogenalkoxy, Halogenalkylthio, Halogenalkylsulfinyl, Halogenalkylsulfonyl mit jeweils 1 bis 3 Kohlenstoffatomen und 1 bis 7
10 gleichen oder verschiedenen Halogenatomen oder für gegebenenfalls einfach bis vierfach, gleich oder verschieden durch Halogen und/oder geradkettiges oder verzweigtes Alkyl mit 1 bis 3 Kohlenstoffatomen und/oder geradkettiges oder verzweigtes Halogenalkyl mit 1 bis 3 Kohlenstoffatomen und 1 bis 7 gleichen oder verschiedenen Halogenatomen substituiertes, zweifach verknüpftes Dioxoalkylen mit 1 bis 3 Kohlenstoffatomen stehen, außerdem für Hydroxycarbonyl, für jeweils geradkettiges oder verzweigtes Alkylcarbonyl oder Alkoxycarbonyl mit jeweils 1 bis 3 Kohlenstoffatomen im Alkylteil, für Cycloalkyloxycarbonyl mit 3, 5 oder 6 Kohlenstoffatomen im Cycloalkylteil oder für jeweils gegebenenfalls einfach oder zweifach, gleich oder verschieden substituiertes Amino oder
15 Aminocarbonyl stehen, wobei als Aminosubstituenten jeweils infrage kommen:

jeweils geradkettiges oder verzweigtes Alkyl mit 1 bis 3 Kohlenstoffatomen, Halogenalkyl mit 1 bis 3 Kohlenstoffatomen und 1 bis 7 Halogenatomen, Alkoxyalkyl oder Alkylcarbonyl mit jeweils 1 bis 3 Kohlenstoffatomen in den einzelnen Alkylteilen oder im Phenylteil jeweils gegebenenfalls einfach bis dreifach,
25 gleich oder verschieden substituiertes Phenylcarbonyl, Phenylsulfonyl, Phenylaminocarbonyl oder Phenylmethylsulfonyl, wobei als Phenylsubstituenten jeweils die bei R¹ genannten infrage kommen;

X¹, X², X³ außerdem für jeweils gegebenenfalls im Phenylteil einfach bis dreifach, gleich oder verschieden substituiertes Phenyl, Phenylloxy, Phenylthio, Phenylsulfinyl, Phenylsulfonyl, Phenylsulfonyloxy, Phenylcarbonyl, Phenylloxycarbonyl,
30

WO 94/22859

PCT/EP94/00786

- 24 -

Phenylthiomethylsulfonyl oder Phenylazo stehen, wobei als Phenylsubstituenten jeweils die bei R¹ genannten infrage kommen und

5 wobei mindestens einer der Substituenten X¹, X², X³ für jeweils geradkettiges oder verzweigtes Halogenalkyl, Halogenalkoxy, Halogenalkylthio, Halogenalkylsulfinyl, Halogenalkylsulfonyl mit jeweils 1 bis 3 Kohlenstoffatomen und 1 bis 7 gleichen oder verschiedenen Halogenatomen, für geradkettiges oder verzweigtes Alkylsulfonyl mit 1 bis 3 Kohlenstoffatomen oder für gegebenenfalls einfach bis vierfach, gleich oder verschieden durch Halogen und/oder geradkettiges oder verzweigtes Alkyl mit 1 bis 3 Kohlenstoffatomen und/oder
10 geradkettiges oder verzweigtes Halogenalkyl mit 1 bis 3 Kohlenstoffatomen und 1 bis 7 gleichen oder verschiedenen Halogenatomen substituiertes, zweifach verknüpftes Dioxyalkylen mit 1 bis 3 Kohlenstoffatomen steht, außerdem für Hydroxycarbonyl, für jeweils geradkettiges oder verzweigtes Alkylcarbonyl oder Alkoxy carbonyl mit jeweils 1 bis 3 Kohlenstoffatomen im Alkylteil, für
15 Cycloalkyloxy carbonyl mit 3, 5 oder 6 Kohlenstoffatomen im Cycloalkylteil oder für jeweils gegebenenfalls einfach oder zweifach, gleich oder verschieden substituiertes Amino oder Aminocarbonyl steht, wobei als Aminosubstituenten jeweils infrage kommen:

20 jeweils geradkettiges oder verzweigtes Alkyl mit 1 bis 3 Kohlenstoffatomen, Halogenalkyl mit 1 bis 3 Kohlenstoffatomen und 1 bis 7 Halogenatomen, Alkoxyalkyl oder Alkylcarbonyl mit jeweils 1 bis 3 Kohlenstoffatomen in den einzelnen Alkylteilen oder im Phenylteil jeweils gegebenenfalls einfach bis dreifach, gleich oder verschieden substituiertes Phenylcarbonyl, Phenylsulfonyl, Phenylaminocarbonyl oder Phenylmethylsulfonyl, wobei als Phenylsubstituenten jeweils
25 die bei R¹ genannten infrage kommen;

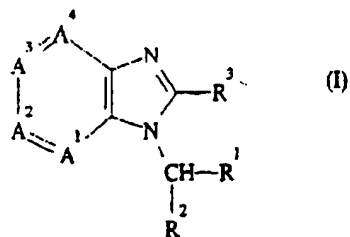
X¹, X², X³ außerdem für jeweils gegebenenfalls im Phenylteil einfach bis dreifach, gleich oder verschieden substituiertes Phenyl, Phenylthio, Phenylsulfinyl, Phenylsulfonyl, Phenylsulfonyloxy, Phenylcarbonyl, Phenylloxycarbonyl, Phenylthiomethylsulfonyl oder Phenylazo, wobei als Phenylsubstituenten jeweils die bei
30 R¹ genannten infrage kommen infrage kommen.

WO 94/22859

PCT/EP94/00786

- 25 -

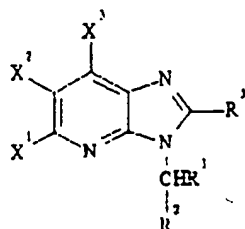
Im einzelnen seien außer den bei den Herstellungsbeispielen genannten Verbindungen die folgenden substituierten heteroanellierten Imidazole der allgemeinen Formel (I) genannt:





WO 94/22859

PCT/EP94/00786

- 26 -

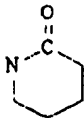
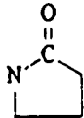
Tabelle I

| X ¹ | X ² | X ³ | R ¹ | R ² | R ³ |
|----------------|----------------|----------------|----------------|--|-----------------|
| H | H | H | H | OEt | CF ₃ |
| H | H | H | H | OPr | CF ₃ |
| H | H | H | H | OCH=CH | CF ₃ |
| H | H | H | H | OiPr | CF ₃ |
| H | H | H | H | OnBu | CF ₃ |
| H | H | H | H | OiBu | CF ₃ |
| H | H | H | H | OtBu | CF ₃ |
| H | H | H | H | Osec.Bu | CF ₃ |
| H | H | H | H | OCH ₂ CH ₂ OMe | CF ₃ |
| H | H | H | H | OCH ₂ CH ₂ OEt | CF ₃ |
| H | H | H | H | N-COOEt | CF ₃ |
| H | H | H | H | Me N-COOEt | CF ₃ |
| H | H | H | H | Et N-COOEt | CF ₃ |
| H | H | H | H | Pr N-COOEt | CF ₃ |
| H | H | H | H |  N-COOEt | CF ₃ |
| H | H | H | H | N-COOEt | CF ₃ |
| H | H | H | H | tBu N-COOEt | CF ₃ |
| H | H | H | H | nPr N-COOEt | CF ₃ |
| H | H | H | H | iPr N-COOEt | CF ₃ |
| H | H | H | H |  N-COOEt | CF ₃ |

WO 94/22859

FCT/EP94/00786

- 27 -

| X ¹ | X ² | X ³ | R ¹ | R ² | R ³ |
|-----------------|-------------------|-----------------|----------------|---|-----------------|
| H | H | H | H |  | CF ₃ |
| H | H | H | H |  | CF ₃ |
| H | Br | H | H | | |
| Br | H | H | H | | |
| H | Br | H | H | | |
| H | Cl | H | H | | |
| Cl | H | H | H | | |
| H | H | Cl | H | | |
| F | H | H | H | | |
| H | F | H | H | | |
| H | H | F | H | | |
| H | CF ₃ | H | H | | |
| CF ₃ | H | H | H | | |
| H | H | CF ₃ | H | | |
| H | OCF ₃ | H | H | | |
| H | SCF ₃ | H | H | | |
| H | NO ₂ | H | H | | |
| H | CHF ₂ | H | H | | |
| H | OCHF ₂ | H | H | | |
| H | H | H | H | CH = CH ₂ | CF ₃ |
| H | H | H | H | C=CH | CF ₃ |
| H | H | H | H | COCH ₃ | CF ₃ |
| H | H | H | H | H ₃ CCONH- | CF ₃ |
| H | H | H | H | (H ₃) ₂ CCONH- | CF ₃ |

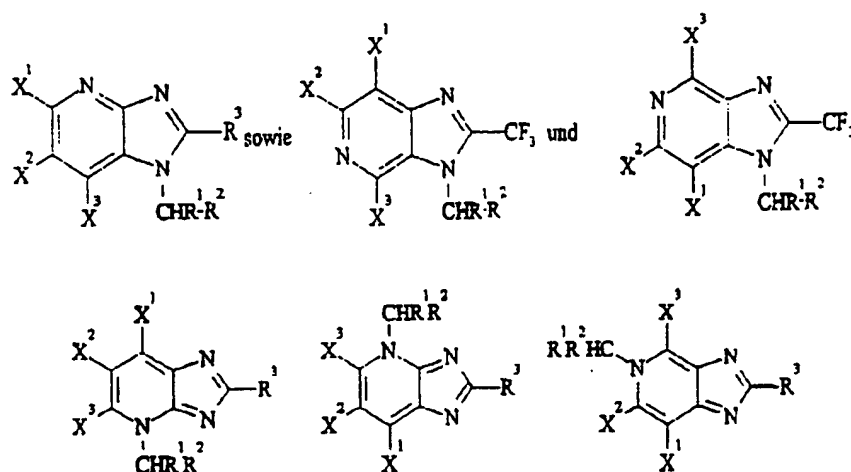
WO 94/22859

PCT/EP94/00786

- 28 -

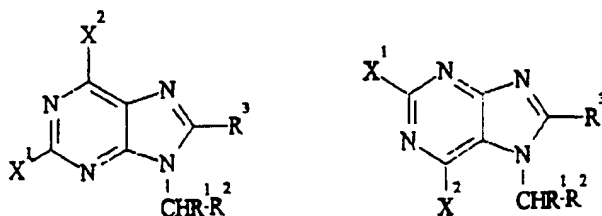
Die gesamten Beispiele gelten auch für $R^3 = \text{CHF}_2$, $R^3 = \text{C}_2\text{F}_5$, $R^3 = \text{C}_3\text{F}_7$ und zudem kann für jedes X^1 bis X^3 -Muster die R^2 und R^3 Variation wie in der Tabelle angegeben ist, durchgeführt werden.

Die in der vorstehenden Tabelle gegebenen Substituentenvariationen können auch für die anderen, isomeren Pyridine gegeben werden:



10

Sinngemäß gilt diese Variation, auf X^1 und X^2 beschränkt, auch für die Pyrimidinoimidazole



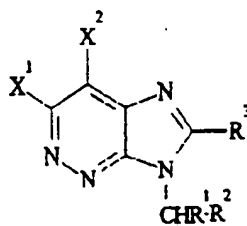
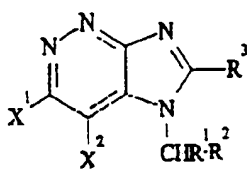
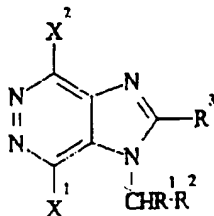
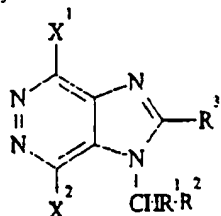
15

WO 94/22859

PCT/EP94/00786

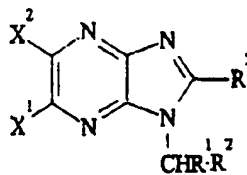
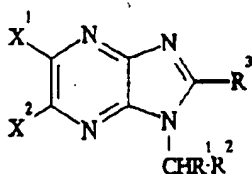
- 29 -

die Pyridazine



5

und die Pyrazine

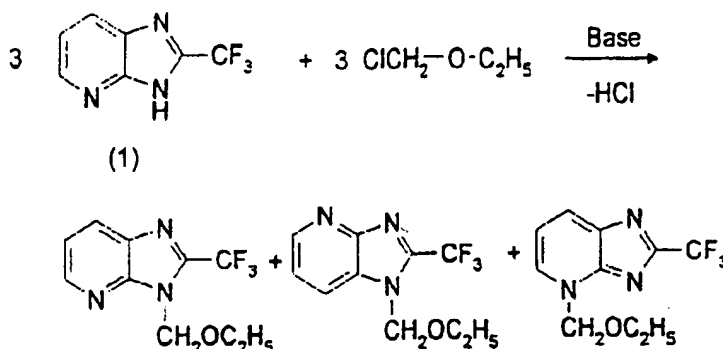


- 10 Verwendet man beispielsweise das Pyrimidinoimidazol (1) und Chlormethylethylester als Ausgangsverbindungen, so läßt sich der Reaktionsablauf des erfindungsgemäßen Verfahrens durch das folgende Reaktionsschema darstellen:

WO 94/22859

FCT/EP94/00786

- 30 -



Die zur Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens als Ausgangsstoffe benötigten heteroanellierten Imidazole sind durch die Formel (II) allgemein definiert. In dieser Formel (II) stehen A¹, A², A³, A⁴ und R³, vorzugsweise für diejenigen Reste, die bereits im Zusammenhang mit der Beschreibung der erfindungsgemäßen Verbindungen der Formel (I) als bevorzugt für diese Substituenten genannt wurden.

Die 1H-heteroanellierten Imidazole der Formel (II) sind bekannt oder erhältlich in Analogie zu bekannten Verfahren (GB 1 114 199; JP 62 294 683; J. Heterocycl. Chem. 18 (2), 303-7; EP 297 661; J. Med. Chem. 33 (8), 2231-9).

Die zur Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens weiterhin als Edukte erforderlichen Verbindungen sind durch die Formel (III) allgemein definiert. In dieser Formel (III) stehen R¹ und R² vorzugsweise für diejenigen Reste, die bereits im Zusammenhang mit der Beschreibung der erfindungsgemäßen Stoffe der Formel (I) als bevorzugt für diese Substituenten genannt wurden.

M steht für einen bei Alkylierungsmitteln üblichen Abgangsrest, vorzugsweise für Halogen, Arylsulfonsäureester, Aralkylsulfonsäureester, Alkylsulfonsäureester, Alkylcarbonyloxy oder Arylcarbonyloxy, besonders bevorzugt für Chlor, Brom, Iod, C₁-8-Alkylsulfonsäureester, Tolylsulfonsäureester, Phenylsulfonsäureester, C₁-8-Alkylcarbonyloxy, oder Benzoyl und insbesondere bevorzugt für Chlor, Brom, C₁-C₂-Alkylsulfonsäureester, Phenylsulfonsäureester Tolylsulfonsäureester, C₁-C₃-Alkylcarbonyloxy oder Benzoyl.

WO 94/22859

PCT/EP94/00786

- 31 -

Die Verbindungen der Formel (III) sind bekannt oder erhältlich in Analogie zu bekannten Verfahren (vergl. z.B. DE 20 40 175; DE 21 19 518; Synthesis 1973, 703).

Als Verdünnungsmittel zur Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens kommen inerte organische Lösungsmittel infrage. Hierzu gehören insbesondere aliphatische, alicyclische oder aromatische, gegebenenfalls halogenierte Kohlenwasserstoffe, wie beispielsweise Benzin, Benzol, Toluol, Xylol, Chlorbenzol, Dichlorbenzol, Petrolether, Hexan, Cyclohexan, Dichlormethan, Chloroform oder Tetrachlorkohlenstoff; Ether, wie Diethylether, Diisopropylether, Dioxan, Tetrahydrofuran oder Ethylenglykoldimethyl- oder -diethylether; Ketone, wie Aceton, Butanon oder Methyl-isobutyl-keton; Nitrile, wie Acetonitril, Propionitril oder Benzonitril; Amide, wie N,N-Dimethylformamid, N,N-Dimethylacetamid, N-Methylformanilid, N-Methylpyrrolidon oder Hexamethylphosphorsäuretriamid; Ester, wie Essigsäuremethylester oder Essigsäureethylester oder Basen wie Pyridin oder organische Säuren, wie Ameisensäure oder Essigsäure.

- 15 Das erfindungsgemäße Verfahren wird vorzugsweise in Gegenwart eines geeigneten Reaktionshilfsmittels durchgeführt. Als solche kommen alle üblichen anorganischen oder organischen Basen infrage. Hierzu gehören beispielsweise Erdalkali- oder Alkalimetallhydride, -hydroxide, -amide, -alkoholate, -acetate, -carbonate oder -hydrogencarbonate, wie beispielsweise Natriumhydrid, Natriumamid, Lithium-diethylamid, 20 Natriummethylat, Natriumethylat, Kalium-tert.-butylat, Natriumhydroxid, Kaliumhydroxid, Ammoniumhydroxid, Natriumacetat, Kaliumacetat, Calciumacetat, Ammoniumacetat, Natriumcarbonat, Kaliumcarbonat, Kaliumhydrogencarbonat, Natriumhydrogencarbonat oder Ammoniumcarbonat, Lithium-organische Verbindungen, wie n-Butyllithium sowie tertiäre Amine, wie Trimethylamin, Triethylamin, Tributylamin, 25 Di-isopropyl-ethylamin, Tetramethylguanidin, N,N-Dimethylamin, Pyridin, Piperidin, N-Methylpiperidin, N,N-Dimethylaminopyridin, Diazabicyclooctan (DABCO), Diazabicyclononen (DBN) oder Diazabicycloundecen (DBU).

- In den Fällen, wo A in Formel (III) für eine Alkohol-, Alkanoyloxy oder Alkoxygruppe steht, kommen als Reaktionshilfsmittel auch organische oder anorganische Säuren, 30 wie beispielsweise Schwefelsäure, Salzsäure, p-Toluolsulfonsäure, Perfluorbutansulfonsäure oder stark saure Ionenaustauscher infrage.

WO 94/22859

PCT/EP94/00786

- 32 -

Das erfindungsgemäße Verfahren kann gegebenenfalls auch in einem Zweiphasensystem, wie beispielsweise Wasser/Toluol oder Wasser/Dichlormethan, gegebenenfalls in Gegenwart eines geeigneten Phasentransferkatalysators, durchgeführt werden. Als Beispiele für solche Katalysatoren seien genannt: Tetrabutylammoniumiodid, Tetrabutylammoniumbromid, Tetrabutylammoniumchlorid, Tributyl-methylphosphoniumbromid, Trimethyl-C₁₃/C₁₅-alkylammoniumchlorid, Trimethyl-C₁₃/C₁₅-alkylammoniumbromid, Dibenzyl-dimethyl-ammoniummethylsulfat, Dimethyl-C₁₂/C₁₄-alkylbenzylammoniumchlorid, Dimethyl-C₁₂/C₁₄-alkyl-benzylammoniumbromid, Tetrabutylammoniumhydroxid, Triethylbenzylammoniumchlorid, Methyltrioctylammoniumchlorid, Trimethylbenzylammoniumchlorid, 15-Krone-5, 18-Krone-6 oder Tris-[2-(2-methoxyethoxy)-ethyl]-amin.

Die Reaktionstemperaturen können bei der Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens in einem größeren Bereich variiert werden. Im allgemeinen arbeitet man bei Temperaturen zwischen -70°C und +200°C, vorzugsweise bei Temperaturen zwischen 0°C und 130°C.

Das erfindungsgemäße Verfahren wird üblicherweise unter Normaldruck durchgeführt. Es ist jedoch auch möglich unter erhöhtem oder vermindertem Druck zu arbeiten.

Zur Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens setzt man pro Mol 1H-heteroanelliertem Imidazol der Formel (II) im allgemeinen 1,0 bis 5,0 Mol, vorzugsweise 1,0 bis 2,5 Mol Verbindung der Formel (III) und gegebenenfalls 0,01 bis 5,0 Mol, vorzugsweise 1,0 bis 3,0 Mol Reaktionshilfsmittel ein.

In einer besonderen Durchführungsform ist es auch möglich, die 1H-heteroanellierten Imidazole der Formel (II) zunächst in einem vorgelagerten Reaktionsschritt mit Hilfe üblicher Silylierungsverfahren beispielsweise mit Hexamethyldisilazan oder Trimethylsilylchlorid, gegebenenfalls in Gegenwart eines geeigneten Katalysators, wie beispielsweise Schwefelsäure, Trifluoressigsäure, Ammoniumsulfat, Imidazol oder Saccharin bei Temperaturen zwischen -20°C und +50°C zu silylieren und die so erhältlichen heteroanellierten 1-Trimethylsilylimidazole in einer anschließenden zweiten Stufe mit Alkylierungsmitteln der Formel (II) gemäß dem erfindungsgemäßen Verfahren umzu-

WO 94/22859

PCT/EP94/00786

- 33 -

setzen. In diesem Fall ist es von Vorteil, als Katalysator zur Alkylierungsreaktion Zinntetrachlorid zuzusetzen (vergl. z.B. Chem. Heterocycl. Comp. USSR 24, 514 [1988])

Die Reaktionsdurchführung, Aufarbeitung und Isolierung der Reaktionsprodukte erfolgt nach bekannten Verfahren (vergl. hierzu auch die Herstellungsbeispiele).

Die Reinigung der Endprodukte der Formel (I) erfolgt mit Hilfe üblicher Verfahren, beispielsweise durch Säulenchromatographie oder durch Umkristallisieren.

Die Charakterisierung erfolgt mit Hilfe des Schmelzpunktes oder bei nicht kristallisierenden Verbindungen - insbesondere bei Regioisomerengemischen - mit Hilfe der Protonen-Kernresonanzspektroskopie ($^1\text{H-NMR}$).

Die erfindungsgemäßen Wirkstoffe eignen sich zur Bekämpfung von tierischen Schädlingen, vorzugsweise Arthropoden und Nematoden, insbesondere Insekten und Spinnentieren, die in der Landwirtschaft, in Forsten, im Vorrats- und Materialschutz sowie auf dem Hygienesektor vorkommen. Sie sind gegen normal sensible und resistente Arten sowie gegen alle oder einzelne Entwicklungsstadien wirksam. Zu den oben erwähnten Schädlingen gehören:

Aus der Ordnung der Isopoda z.B. *Oniscus asellus*, *Armadillidium vulgare*, *Porcellio scaber*.

Aus der Ordnung der Diplopoda z.B. *Blaniulus guttulatus*

20 Aus der Ordnung der Chilopoda z.B. *Geophilus carpophagus*, *Scutigera spec.*

Aus der Ordnung der Symphyla z.B. *Scutigera immaculata*.

Aus der Ordnung der Thysanura z.B. *Lepisma saccharina*.

Aus der Ordnung der Collembola z.B. *Onychiurus ascanus*.

Aus der Ordnung der Orthoptera z.B. *Blatta orientalis*, *Periplaneta americana*,
25 *Leucophaea maderae*, *Blattella germanica*, *Acheta domesticus*, *Gryllotalpa spp.*,
Locusta migratoria migratorioides, *Melanoplus differentialis*, *Schistocerca gregaria*.

Aus der Ordnung der Dermaptera z.B. *Forficula auricularia*.

Aus der Ordnung der Isoptera z.B. *Reticulitermes spp.*

WO 94/22859

PCT/EF94/00786

- 34 -

Aus der Ordnung der Anoplura z.B. *Phylloxera vastatrix*, *Pemphigus* spp., *Pediculus humanus corporis*, *Haematopinus* spp., *Linognathus* spp..

Aus der Ordnung der Mallophaga z.B. *Trichodectes* spp., *Damalinea* spp.

Aus der Ordnung der Thysanoptera z.B. *Hercinothrips femoralis*, *Thrips tabaci*.

- 5 Aus der Ordnung der Heteroptera z.B. *Eurygaster* spp., *Dysdercus intermedius*, *Piesma quadrata*, *Cimex lectularius*, *Rhodnius prolixus*, *Triatoma* spp.

- Aus der Ordnung der Homoptera z.B. *Aleurodes brassicae*, *Bemisia tabaci*, *Trialeurodes vaporariorum*, *Aphis gossypii*, *Brevicoryne brassicae*, *Cryptomyzus ribis*, *Aphis fabae*, *Doralis pomi*, *Eriosoma lanigerum*, *Hyalopterus arundinis*, *Macrosiphum avenae*, *Myzus* spp., *Phorodon humuli*, *Rhopalosiphum padi*, *Empoasca* spp., *Euscelis bilobatus*, *Nephotettix cincticeps*, *Lecanium corni*, *Saissetia oleae*, *Laodelphax striatellus*, *Nilaparvata lugens*, *Aonidiella aurantii*, *Aspidiotus hederae*, *Pseudococcus* spp., *Psylla* spp.
- 10

- Aus der Ordnung der Lepidoptera z.B. *Pectinophora gossypiella*, *Bupalus piniarius*, *Cheimatobia brumata*, *Lithocolletis blancardella*, *Hyponomeuta padella*, *Plutella maculipennis*, *Malacosoma neustria*, *Euproctis chrysorrhoea*, *Lymantria* spp., *Bucculatrix thurberiella*, *Phyllocnistis citrella*, *Agrotis* spp., *Euxoa* spp., *Feltia* spp., *Earias insulana*, *Heliothis* spp., *Spodoptera exigua*, *Mamestra brassicae*, *Panolis flammea*, *Prodenia litura*, *Spodoptera* spp., *Trichoplusia ni*, *Carpocapsa pomonella*, *Pieris* spp., *Chilo* spp., *Pyrausta nubilalis*, *Ephesia kuehniella*, *Galleria mellonella*, *Tineola bisselliella*, *Tinca pellionella*, *Hofmannophila pseudospretella*, *Cacoecia podana*, *Capua reticulana*, *Choristoneura fumiferana*, *Clysia ambiguella*, *Homona magnanima*, *Tortrix viridana*.
- 15
- 20

- Aus der Ordnung der Coleoptera z.B. *Anobium punctatum*, *Rhizopertha dominica*, *Acanthoscelides obtectus*, *Acanthoscelides obtectus*, *Hylotrupes bajulus*, *Agelastica alni*, *Leptinotarsa decemlineata*, *Phaedon cochleariae*, *Diabrotica* spp., *Psylliodes chrysocephala*, *Epilachna varivestris*, *Atomaria* spp., *Oryzaephilus surinamensis*, *Anthonomus* spp., *Sitophilus* spp., *Otiorrhynchus sulcatus*, *Cosmopolites sordidus*, *Ceutorrhynchus assimilis*, *Hypera postica*, *Dermestes* spp., *Trogoderma* spp., *Anthrenus* spp., *Attagenus* spp., *Lyctus* spp., *Meligethes aeneus*, *Ptinus* spp., *Niptus hololeucus*, *Gibbium psyllodes*, *Tribolium* spp., *Tenebrio molitor*, *Agriotes* spp.,
- 25
- 30

WO 94/22859

PCT/EI94/00786

- 35 -

Conoderus spp., Melolontha melolontha, Amphimallon solstitialis, Costelytra zealandica.

Aus der Ordnung der Hymenoptera z.B. Diprion spp., Hoplocampa spp., Lasius spp., Monomorium pharaonis, Vespa spp.

- 5 Aus der Ordnung der Diptera z.B. Aedes spp., Anopheles spp., Culex spp., Drosophila melanogaster, Musca spp., Fannia spp., Calliphora erythrocephala, Lucilia spp., Chrysomya spp., Cuterebra spp., Gastrophilus spp., Hyppobosca spp., Stomoxys spp., Oestrus spp., Hypoderma spp., Tabanus spp., Tannia spp., Bibio hortulanus, Oscinella frit, Phorbia spp., Pegomyia hyoscyami, Ceratitis capitata,
- 10 Dacus oleae, Tipula paludosa.

Aus der Ordnung der Siphonaptera z.B. Xenopsylla cheopis, Ceratophyllus spp..

Aus der Ordnung der Arachnida z.B. Scorpio maurus, Latrodectus mactans.

- Aus der Ordnung der Acarina z.B. Acarus siro, Argas spp., Ornithodoros spp., Dermanyssus gallinae, Eriophyes ribis, Phyllocoptura oleivora, Boophilus spp.,
- 15 Rhipicephalus spp., Amblyomma spp., Hyalomma spp., Ixodes spp., Psoroptes spp., Chorioptes spp., Sarcoptes spp., Tarsonemus spp., Bryobia praetiosa, Panonychus spp., Tetranychus spp..

Die erfindungsgemäßen Wirkstoffe zeichnen sich durch eine hohe insektizide und akarizide Wirksamkeit aus.

- 20 Sie lassen sich mit besonders gutem Erfolg zur Bekämpfung von pflanzenschädigenden Insekten, wie beispielsweise gegen die Larven des Meerettichblattkäfers (Phaedon cochleariae) oder gegen die Larven der grünen Reiszikade (Nephotettix cincticeps) gegen die Raupen der Kohlschabe Plutella maculipennis.
- 25 Die erfindungsgemäßen Wirkstoffe können weiterhin als Defolianten, Krautabtötungsmittel und insbesondere als Unkrautvernichtungsmittel verwendet werden. Unter Unkraut im weitesten Sinne sind alle Pflanzen zu verstehen, die an Orten aufwachsen,

WO 94/22859

PCT/EP94/00786

- 36 -

wo sie unerwünscht sind. Ob die erfindungsgemäßen Stoffe als totale oder selektive Herbizide wirken, hängt im wesentlichen von der angewendeten Menge ab.

Die erfindungsgemäßen Wirkstoffe können z.B. bei den folgenden Pflanzen verwendet werden:

- 5 Dikotyle Unkräuter der Gattungen: Sinapis, Lepidium, Galium, Stellaria, Matricaria, Anthemis, Galinsoga, Chenopodium, Urtica, Senecio, Amaranthus, Portulaca, Xanthium, Convolvulus, Ipomoea, Polygonum, Sesbania, Ambrosia, Cirsium, Carduus, Sonchus, Solanum, Rorippa, Rotala, Lindernia, Lamium, Veronica, Abutilon, Emex, Datura, Viola, Galeopsis, Papaver, Centaurea.

- 10 Dikotyle Kulturen der Gattungen: Gossypium, Glycine, Beta, Daucus, Phaseolus, Pisum, Solanum, Linum, Ipomoea, Vicia, Nicotiana, Lycopersicon, Arachis, Brassica, Lactuca, Cucumis, Cucurbita.

- Monokotyle Unkräuter der Gattungen: Echinochloa, Setaria, Panicum, Digitaria, Phleum, Poa, Festuca, Eleusine, Brachiaria, Lolium, Bromus, Avena, Cyperus, Sorghum, Agropyron, Cynodon, Monochoria, Fimbristylis, Sagittaria, Eleocharis, Scirpus, 15 Paspalum, Ischaemum, Sphenoclea, Dactyloctenium, Agrostis, Alopecurus, Apera.

Monokotyle Kulturen der Gattungen: Oryza, Zea, Triticum, Hordeum, Avena, Secale, Sorghum, Panicum, Saccharum, Ananas, Asparagus, Allium.

- Die Verwendung der erfindungsgemäßen Wirkstoffe ist jedoch keineswegs auf diese 20 Gattungen beschränkt, sondern erstreckt sich in gleicher Weise auch auf andere Pflanzen.

- Die Verbindungen eignen sich in Abhängigkeit von der Konzentration zur Totalunkrautbekämpfung z.B. auf Industrie- und Gleisanlagen und auf Wegen und Plätzen mit und ohne Baumbewuchs. Ebenso können die Verbindungen zur Unkrautbekämpfung 25 in Dauerkulturen, z.B. Forst, Ziergehölz-, Obst-, Wein-, Zitrus-, Nuß-, Bananen-, Kaffee-, Tee-, Gummi-, Ölpalm-, Kakao-, Beerenfrucht- und Hopfenanlagen und zur selektiven Unkrautbekämpfung in einjährigen Kulturen eingesetzt werden.

WO 94/22859

PCT/EP94/00786

- 37 -

Dabei lassen sich die erfindungsgemäßen Wirkstoffe mit besonders gutem Erfolg zur Bekämpfung von mono- und dikotylen Unkräutern in monokotylen und dikotylen Kulturen wie beispielsweise Weizen, Mais oder Soja einsetzen.

Die Wirkstoffe können in die üblichen Formulierungen übergeführt werden, wie Lösungen, Emulsionen, Suspensionen, Pulver, Schäume, Pasten, Granulate, Aerosole, Wirkstoff-imprägnierte Natur- und synthetische Stoffe, Feinstverkapselungen in polymeren Stoffen.

Diese Formulierungen werden in bekannter Weise hergestellt, z.B. durch Vermischen der Wirkstoffe mit Streckmitteln, also flüssigen Lösungsmitteln, unter Druck stehenden verflüssigten Gasen und/oder festen Trägerstoffen, gegebenenfalls unter Verwendung von oberflächenaktiven Mitteln, also Emulgiermitteln und/oder Dispergiermitteln und/oder schaumerzeugenden Mitteln.

Im Falle der Benutzung von Wasser als Streckmittel können z.B. auch organische Lösungsmittel als Hilfslösungsmittel verwendet werden. Als flüssige Lösungsmittel kommen im wesentlichen infrage: Aromaten, wie Xylol, Toluol, Alkyl-naphthaline, chlorierte Aromaten oder chlorierte aliphatische Kohlenwasserstoffe, wie Chlorbenzole, Chlorethylene, oder Methylenchlorid, aliphatische Kohlenwasserstoffe, wie Cyclohexan oder Paraffine, z.B. Erdölfraktionen, mineralische und pflanzliche Öle, Alkohole, wie Butanol oder Glykol sowie deren Ether und Ester, Ketone, wie Aceton, Methylethylketon, Methylisobutylketon oder Cyclohexanon, stark polare Lösungsmittel, wie Dimethylformamid oder Dimethylsulfoxid, sowie Wasser.

Als feste Trägerstoffe kommen infrage: z.B. Ammoniumsalze und natürliche Gesteinsmehle, wie Kaoline, Tonerden, Talkum, Kreide, Quartz, Attapulgit, Montmorillonit oder Diatomeenerde und synthetische Gesteinsmehle, wie hochdisperse Kieselsäure, Aluminiumoxid und Silikate; als feste Trägerstoffe für Granulate kommen infrage: z.B. gebrochene und fraktionierte natürliche Gesteine wie Calcit, Marmor, Bims, Sepiolith, Dolomit sowie synthetische Granulate aus anorganischen und organischen Mehlen sowie Granulate aus organischem Material wie Sägemehl, Kokosmußschalen, Maiskolben und Tabakstengel; als Emulgier- und/oder schaumerzeugende Mittel kommen infrage: z.B. nicht ionogene und anionische Emulgatoren, wie Poly-

WO 94/22859

PCT/EP94/00786

- 38 -

oxyethylen-Fettsäureester, Polyoxyethylen-Fettalkohol-Ether, z.B. Alkylarylpolyglykolether, Alkylsulfonate, Alkylsulfate, Arylsulfonate sowie Eiweißhydrolysate; als Dispergiermittel kommen infrage: z.B. Ligninsulfatablaugen und Methylcellulose.

- Es können in den Formulierungen Haftmittel wie Carboxymethylcellulose, natürliche
5 und synthetische, pulverige, körnige oder latexförmige Polymere verwendet werden, wie Gummiarabicum, Polyvinylalkohol, Polyvinylacetat, sowie natürliche Phospholipide, wie Kephaline und Lecithine und synthetische Phospholipide. Weitere Additive können mineralische und vegetabile Öle sein.

- Es können Farbstoffe wie anorganische Pigmente, z.B. Eisenoxid, Titanoxid, Ferrocyanblau und organische Farbstoffe, wie Alizarin-, Azo- und Metallphthalocyaninfarbstoffe und Spurennährstoffe wie Salze von Eisen, Mangan, Bor, Kupfer, Kobalt,
10 Molybdän und Zink verwendet werden.

Die Formulierungen enthalten im allgemeinen zwischen 0,1 und 95 Gewichtsprozent Wirkstoff, vorzugsweise zwischen 0,5 und 90 %.

- 15 Die erfindungsgemäßen Wirkstoffe können als solche oder in ihren Formulierungen auch in Mischung mit bekannten Herbiziden zur Unkrautbekämpfung Verwendung finden, wobei Fertigformulierungen oder Tankmischungen möglich sind.

- Für die Mischungen kommen bekannte Herbizide infrage, beispielsweise Anilide, wie z.B. Diflufenican und Propanil; Arylcarbonsäuren, wie z.B. Dichlorpicolinsäure, Dicamba oder Picloram; Aryloxyalkansäuren, wie z.B. 2,4-D, 2,4-DB, 2,4-DP, Fluroxypyr, MCPA, MCPP und Triclopyr; Aryloxy-phenoxy-alkansäureester, wie z.B. Diclofop-methyl, Fenoxaprop-ethyl, Fluazifop-butyl, Haloxypop-methyl und Quizalofop-ethyl; Azinone, wie z.B. Chloridazon und Norflurazon; Carbamate, wie z.B. Chlorpropham, Desmedipham, Phenmedipham und Propham; Chloracetanilide, wie z.B.
20 Alachlor, Acetochlor, Butachlor, Metazachlor, Metolachlor, Pretilachlor und Propachlor; Dinitroaniline, wie z.B. Oryzalin, Pendimethalin und Trifluralin; Diphenylether, wie z.B. Acifluorfen, Bifenox, Fluoroglycofen, Fomesafen, Halosafen, Lactofen und Oxyfluorfen; Harnstoffe, wie z.B. Chlortoluron, Diuron, Fluometuron, Isoproturon, Linuron und Methabenzthiazuron; Hydroxylamine, wie z.B. Alloxydim, Clethodim,
25 Cycloxydim, Sethoxydim und Tralkoxydim; Imidazolinone, wie z.B. Imazethapyr,

WO 94/22859

PCT/EP94/00786

- 39 -

- Imazamethabenz, Imazapyr und Imazaquin; Nitrile, wie z.B. Bromoxynil, Dichlobenil und Ioxynil; Oxyacetamide, wie z.B. Mefenacet; Sulfonylharnstoffe, wie z.B. Amidosulfuron, Bensulfuron-methyl, Chlorimuron-ethyl, Chlorsulfuron, Cinosulfuron, Metsulfuron-methyl, Nicosulfuron, Primisulfuron, Pyrazosulfuron-ethyl, Thifensulfuron-methyl, Triasulfuron und Tribenuron-methyl; Thiolcarbamate, wie z.B. Butylate, Cycloate, Diallylate, EPTC, Esprocarb, Molinate, Prosulfocarb, Thiobencarb und Triallate; Triazine, wie z.B. Atrazin, Cyanazin, Simazin, Simetryne, Terbutryne und Terbutylazin; Triazinone, wie z.B. Hexazinon, Metamitron und Metribuzin; Sonstige, wie z.B. Aminotriazol, Benfuresate, Bentazone, Cinnethylin, Clomazone, Clopyralid, 5 Difenzoquat, Dithiopyr, Ethofumesate, Fluorochloridone, Glufosinate, Glyphosate, 10 Isoxaben, Pyridate, Quinchlorac, Quinmerac, Sulphosate und Tridiphane.

Auch eine Mischung mit anderen bekannten Wirkstoffen, wie Fungiziden, Insektiziden, Akariziden, Nematiziden, Schutzstoffen gegen Vogelfraß, Pflanzennährstoffen und Bodenstrukturverbesserungsmitteln ist möglich.

- 15 Die Wirkstoffe können als solche, in Form ihrer Formulierungen oder den daraus durch weiteres Verdünnen bereiteten Anwendungsformen, wie gebrauchsfertige Lösungen, Suspensionen, Emulsionen, Pulver, Pasten und Granulate angewandt werden. Die Anwendung geschieht in üblicher Weise, z.B. durch Gießen, Spritzen, Sprühen, Streuen.
- 20 Die erfindungsgemäßen Wirkstoffe können sowohl vor als auch nach dem Auflaufen der Pflanzen appliziert werden.

Sie können auch vor der Saat in den Boden eingearbeitet werden.

- Die angewandte Wirkstoffmenge kann in einem größeren Bereich schwanken. Sie hängt im wesentlichen von der Art des gewünschten Effektes ab. Im allgemeinen liegen die Aufwandmengen zwischen 0,001 und 10 kg Wirkstoff pro Hektar Bodenfläche, 25 vorzugsweise zwischen 0,005 und 5 kg pro Hektar.

Die erfindungsgemäßen Wirkstoffe können bei der Anwendung als Insektizide ebenfalls in ihren handelsüblichen Formulierungen sowie in den aus diesen Formulierungen bereiteten Anwendungsformen in Mischung mit anderen Wirkstoffen,

WO 94/22859

PCT/EP94/00786

- 40 -

wie Insektiziden, Lockstoffen, Sterilantien, Akariziden, Nematiziden, Fungiziden, wachstumsregulierenden Stoffen oder Herbiziden vorliegen. Zu den Insektiziden zählen beispielsweise Phosphorsäureester, Carbamate, Carbonsäureester, chlorierte Kohlenwasserstoffe, Phenylharnstoffe, durch Mikroorganismen hergestellte Stoffe u.a.

- 5 Die erfindungsgemäßen Wirkstoffe können bei der Anwendung als Insektizide ferner in ihren handelsüblichen Formulierungen sowie in den aus diesen Formulierungen bereiteten Anwendungsformen in Mischung mit Synergisten vorliegen. Synergisten sind Verbindungen, durch die die Wirkung der Wirkstoffe gesteigert wird, ohne daß der zugesetzte Synergist selbst aktiv wirksam sein muß.
- 10 Der Wirkstoffgehalt der aus den handelsüblichen Formulierungen bereiteten Anwendungsformen kann in weiten Bereichen variieren. Die Wirkstoffkonzentration der Anwendungsformen kann von 0,0000001 bis zu 95 Gewichtsprozent Wirkstoff, vorzugsweise zwischen 0,0001 und 1 Gewichtsprozent liegen.

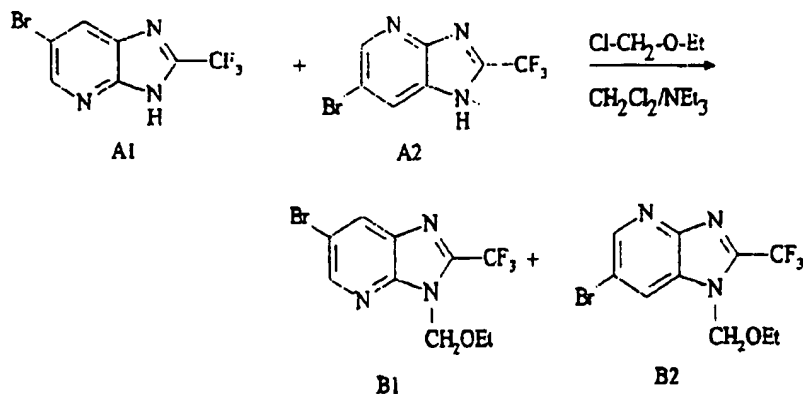
- Die Anwendung geschieht bei der Anwendung als Insektizide in einer den
- 15 Anwendungsformen angepaßten üblichen Weise.

Die Herstellung und die Verwendung der erfindungsgemäßen Wirkstoffe geht aus den nachfolgenden Beispielen hervor.

WO 94/22859

PCT/EP94/00786

- 41 -

Herstellungsbeispiele**Beispiel I**

- 2,66 g (0,01 Mol) 2-Trifluormethyl-brom-pyridino-[1H]-imidazol (A1/A2) und
 5 1,75 ml (0,0125 Mol) Triethylamin werden in 100 ml Dichlormethan gelöst. Dazu
 tropft man 1,25 ml (0,0125 Mol) Chlormethyl-methylether, erhitzt anschließend auf
 Rückflußtemperatur und rührt 16 Stunden lang bei Rückflußtemperatur nach. Zur
 Aufarbeitung wird die abgekühlte Reaktionsmischung dreimal mit je 30 ml Wasser
 gewaschen, über MgSO_4 getrocknet, im Vakuum eingeeengt und der Rückstand durch
 10 Chromatografie an Kieselgel (Laufmittel: Dichlormethan) gereinigt.
 Man erhält 2,40 g (74 % der Theorie) 1-Ethoxymethyl-2-trifluormethyl-brompyridino-
 imidazol als Regioisomerengemisch (B1/B2) im Verhältnis 60:40 (Fp.: 68°C).

$^1\text{H-NMR}$ ($\text{CDCl}_3/\text{Tetramethylsilan}$): $\delta = 5,68$ (s, 2H); $5,85$ (s, 2H) ppm (jeweils N- $\text{CH}_2\text{-O-}$).

- 15 Durch Umkristallisation mit einem Ether/Petrolether-Gemisch lassen sich die
 Isomeren voneinander trennen.

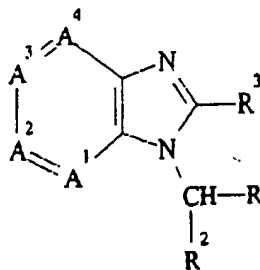
Analog werden die in der nachfolgenden Tabelle aufgeführten Verbindungen erhalten.

WO 94/22859

PCT/EP94/00786

- 42 -

Tabelle II



| Beispiel Nr. | A ¹ | A ² | A ³ | A ⁴ | R ¹ | R ² | R ³ | physikali- sche Daten |
|-----------------|----------------|----------------|----------------|----------------|----------------|--------------------------------|-----------------|--------------------------------------|
| 2 | N | CH | CH | CH | H | OC ₂ H ₅ | CF ₃ | Fp.: 92°C |
| 3 | CH | CH | CH | N | H | OC ₂ H ₅ | CF ₃ | Fp.: 170°C |
| 4 | CH | N | CH | CH | H | OC ₂ H ₅ | CF ₃ | ¹ H-NMR*: 5.89 (s, 2H) |
| 5 | CH | CH | N | CH | H | OC ₂ H ₅ | CF ₃ | ¹ H-NMR*: 6.08 (s, 2H) |
| 6 | N | CH | CBr | CH | H | | CF ₃ | ¹ H-NMR*: 5.90 (s, 2H) |
| 7 | CH | CBr | CH | N | H | | CF ₃ | ¹ H-NMR*: 6.08 (s, 2H) |

WU 94/22859

PCT/EP94/00786

- 43 -

Tabelle II (Fortsetzung)

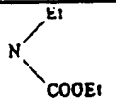
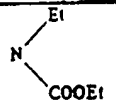
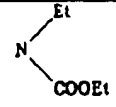
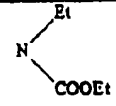
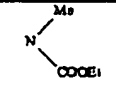
| Beispiel Nr. | A ¹ | A ² | A ³ | A ⁴ | R ¹ | R ² | R ³ | physikali- sche Daten |
|-----------------|----------------|----------------|----------------|----------------|----------------|--------------------------------|------------------|--------------------------------------|
| 8 | N | CH | CBr | CH | H | | CF ₃ | ¹ H-NMR*: 5.90 (s, 2H) |
| 9 | CH | CHr | CH | N | H | | CF ₃ | ¹ H-NMR*: 6.10 (s, 2H) |
| 10 | N | CH | CBr | CH | H | | CF ₃ | ¹ H-NMR*: 5.89 (s, 2H) |
| 11 | CH | CBr | CH | N | H | | CF ₃ | ¹ H-NMR*: 6.09 (s, 2H) |
| 12 | N | CH | CBr | CH | H | | CF ₃ | ¹ H-NMR*: 5.90 (s, 2H) |
| 13 | CH | CBr | CH | N | H | | CF ₃ | ¹ H-NMR*: 6.11 (s, 2H) |
| 14 | N | CH | CH | CH | H | OC ₂ H ₅ | CHF ₂ | ¹ H-NMR*: 5.91 (s, 2H) |
| 15 | CH | CH | CH | N | H | OC ₂ H ₅ | CHF ₂ | ¹ H-NMR*: 6.14 (s, 2H) |

WO 94/22859

PCT/EP94/06786

- 44 -

Tabelle II (Fortsetzung)


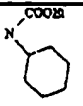
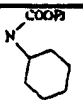
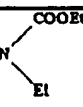
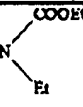
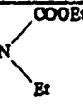
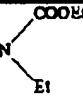

| Beispiel Nr. | A ¹ | A ² | A ³ | A ⁴ | R ¹ | R ² | R ³ | physikali- sche Daten |
|-----------------|----------------|----------------|----------------|----------------|----------------|---|------------------|--|
| 16 | CH | N | CH | CH | H |  | CF ₃ | ¹ H-NMR*: 5.83 (s, 2H) Fp.: 120°C |
| 17 | CH | CH | N | CH | H |  | CF ₃ | ¹ H-NMR*: 6.03 (s, 2H) |
| 18 | N | CH | CH | CH | H | CH=CH ₂ | CF ₃ | ¹ H-NMR*: 5.35 (d, J = 3 Hz, 2H) |
| 19 | N | CH | CH | CH | H | COCH ₃ | CF ₃ | Fp.: 148- 150°C |
| 20 | N | CH | CH | CH | H | CN | CHF ₂ | ¹ H-NMR*: 5.48 (s, 2H) |
| 21 | N | CH | CH | CH | H |  | CF ₃ | ¹ H-NMR*: 5.89 (s, 2H) |
| 22 | CH | CH | CH | N | H |  | CF ₃ | ¹ H-NMR*: 6.12 (s, 2H) |
| 23 | N | CH | CH | CH | H |  | CF ₃ | ¹ H-NMR*: 5.94 (s, 2H) |

WO 94/22859

PCT/EP94/00786

- 45 -

Tabelle II (Fortsetzung)

| Beispiel Nr. | A ¹ | A ² | A ³ | A ⁴ | R ¹ | R ² | R ³ | physikali- sche Daten |
|-----------------|---|----------------|----------------|----------------|----------------|---|------------------|--|
| 24 | CH | CH | CH | N | H |  | CF ₃ | ¹ H-NMR*: 6.12 (s, 2H) |
| 25 | N | CH | CH | CH | H |  | CHF ₂ | ¹ H-NMR*: 5.88 (s, 2H) Fp.: 119°C |
| 26 | CH | CH | CH | N | H |  | CHF ₂ | ¹ H-NMR*: 6.02 (s, 2H) |
| 27 | N | CH | CH | CH | H |  | CHF ₂ | ¹ H-NMR*: 5.93 (s, 2H) |
| 28 | CH | CH | CH | N | H |  | CHF ₂ | ¹ H-NMR*: 6.14 (s, 2H) Fp.: 84°C |
| 29 | N | CCl | CH | CH | H |  | CF ₃ | ¹ H-NMR*: 5.88 (s, 2H) |
| 30 | CH | CH | CCl | N | H |  | CF ₃ | ¹ H-NMR*: 6.02 (s, 2H) |
| 31 |  | CH | CH | CH | H | CN | CF ₃ | Fp.: 184- 186°C |

WO 94/22859

PCT/EP94/00786

- 46 -

- * Die ^1H -NMR-Spektren wurden in Deuteriochloroform (CDCl_3) mit Tetramethylsilan (TMS) als innerem Standard aufgenommen. Angegeben ist die chemische Verschiebung als δ -Wert in ppm; in allen Fällen wird die
- 5 Verschiebung der $\text{N-CH}_2\text{R}^1\text{R}^2$ -Protonen angegeben.

WO 94/22859

PCT/EP94/00786

- 47 -

Beispiel A:Pre-emergence-Test

Lösungsmittel: 5 Gewichtsteile Aceton

Emulgator: 1 Gewichtsteil Alkylarylpolglykolether

- 5 Zur Herstellung einer zweckmäßigen Wirkstoffzubereitung vermischt man einen Gewichtsteil Wirkstoff mit der angegebenen Menge Lösungsmittel, gibt die angegebene Menge Emulgator zu und verdünnt das Konzentrat mit Wasser auf die gewünschte Konzentration.

- 10 Samen der Testpflanzen werden in normalem Boden ausgesät und nach 24 Stunden mit der Wirkstoffzubereitung begossen. Dabei hält man die Wassermenge pro Flächeneinheit zweckmäßigerweise konstant. Die Wirkstoffkonzentration in der Zubereitung spielt keine Rolle, entscheidend ist nur die Aufwandmenge des Wirkstoffes pro Flächeneinheit. Nach drei Wochen wird der Schädigungsgrad der Pflanzen bonitiert in % Schädigung im Vergleich zur Entwicklung der unbehandelten Kontrolle.

- 15 Es bedeuten:

0 % = keine Wirkung (wie unbehandelte Kontrolle)

100% = totale Vernichtung

- 20 Eine deutliche Überlegenheit in der Wirksamkeit bei vergleichbarer Nutzpflanzenselektivität zeigen in diesem Test die Verbindungen gemäß der Herstellungsbeispiele (1) und (6) zum Beispiel in Weizenkulturen bei Aufwandmengen von 1 000 g pro Hektar gegenüber Unkräutern wie Chenopodium (95-100 %), Galinsoga (95-100 %), Matricaria (90-95 %), Portulaca (100 %), Stellaria (100 %) und Viola (90-95 %), wobei Weizen nicht geschädigt wird (0 %).

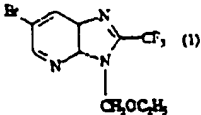
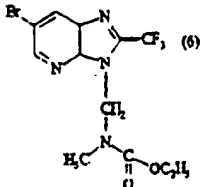
WO 94/22859

PCT/EP94/00786

- 48 -

Tabelle III

Pre-emergence-Test/Gewächshaus

| Wirkstoff | Aufwandmenge g/ha | Weizen | Chenopodium | Gahnsoga | Matricaria | Portulaca | Stellaria | Viola |
|--|----------------------|--------|-------------|----------|------------|-----------|-----------|-------|
|  (1) | 1000 | 0 | 100 | 100 | 95 | 100 | 100 | 95 |
|  (6) | 1000 | 0 | 95 | 95 | 90 | 100 | 100 | 90 |

WO 94/22859

PCT/EP94/00786

- 49 -

Beispiel B:Post-emergence-Test

Lösungsmittel: 5 Gewichtsteile Aceton

Emulgator: 1 Gewichtsteil Alkylarylpolglykolether

- 5 Zur Herstellung einer zweckmäßigen Wirkstoffzubereitung vermischt man ein Gewichtsteil Wirkstoff mit der angegebenen Menge Lösungsmittel, gibt die angegebene Menge Emulgator zu und verdünnt das Konzentrat mit Wasser auf die gewünschte Konzentration.

- 10 Mit der Wirkstoffzubereitung spritzt man Testpflanzen, welche eine Höhe von 5 bis 15 cm haben so, daß die jeweils gewünschten Wirkstoffmengen pro Flächeneinheit ausgebracht werden. Nach drei Wochen wird der Schädigungsgrad der Pflanzen bonitiert in % Schädigung im Vergleich zur Entwicklung der unbehandelten Kontrolle.

Es bedeuten:

- 0 % = keine Wirkung (wie unbehandelte Kontrolle)
15 100% = totale Vernichtung

- Eine deutliche Überlegenheit in der Wirksamkeit ebenso wie in der Nutzpflanzenselektivität zeigen in diesem Test die Verbindungen gemäß der Herstellungsbeispiele (1), (6) und (12) zum Beispiel in Weizenkulturen bei Aufwandmengen von 250 g pro Hektar gegenüber Unkräutern wie Datura (90-100 %), Helianthus (90-100 %),
20 Portulaca (90-100 %), Sinapis (100 %) und Solanum (80-100 %), wobei Weizen nicht geschädigt wird (0 %).

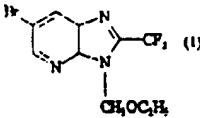
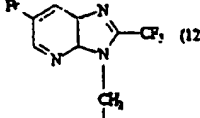
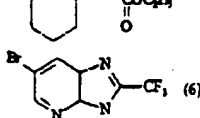
WO 94/22859

PCT/EP94/00786

- 50 -

Tabelle IV

Post-emergence-Test/Gewächshaus

| Wirkstoff | Auf- wand- menge g/ha | Weizen | Datura | Helianthus | Portulaca | Sinapis | Solanum |
|---|--------------------------------|--------|--------|------------|-----------|---------|---------|
|  (11) | 250 | 0 | 90 | 90 | 90 | 100 | 80 |
|  (12) | 250 | 0 | 100 | 100 | 100 | 100 | 100 |
|  (6) | 250 | 0 | 100 | 100 | 100 | 100 | 100 |

WO 94/22859

PCT/EP94/00766

- 51 -

Beispiel C:

Phaedon-Larven-Test

Lösungsmittel: 7 Gewichtsteile Dimethylformamid

Emulgator: 1 Gewichtsteil Alkylarylpolyglykoether

- 5 Zur Herstellung einer zweckmäßigen Wirkstoffzubereitung vermischt man ein Gewichtsteil Wirkstoff mit der angegebenen Menge Lösungsmittel und der angegebenen Menge Emulgator und verdünnt das Konzentrat mit Wasser auf die gewünschte Konzentration.

- 10 Kohlblätter (*Brassica oleracea*) werden durch Tauchen in die Wirkstoffzubereitung der gewünschten Konzentration behandelt und mit Meerrettichblattkäfer-Larven (*Phaedon cochleariae*) besetzt, solange die Blätter noch feucht sind.

Nach der gewünschten Zeit wird die Abtötung in % bestimmt. Dabei bedeutet 100 %, daß alle Käfer-Larven abgetötet wurden; 0 % bedeutet, daß keine Käfer-Larven abgetötet wurden.

- 15 Bei diesem Test zeigt z.B. die Verbindung des Herstellungsbeispiels (1) einen Abtötungsgrad von 100 % nach 7 Tagen bei einer Wirkstoffkonzentration von 0,1 %.

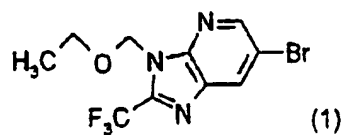
WO 94/22859

PCT/EP94/00786

- 52 -

Tabelle VPhaedon-Larven-Test
(pflanzenschädigende Insekten)

Wirkstoffe

Wirkstoffkon-
zentration
in %
Abtötungs-
grad in %
nach 7^d

0,1

100

WO 94/22859

PCT/EP94/00786

- 53 -

Beispiel D:Plutella-Test

Lösungsmittel: 5 Gewichtsteile Dimethylformamid

Emulgator: 1 Gewichtsteil Alkylarylpolglykolether

- 5 Zur Herstellung einer zweckmäßigen Wirkstoffzubereitung vermischt man ein Gewichtsteil Wirkstoff mit der angegebenen Menge Lösungsmittel und der angegebenen Menge Emulgator und verdünnt das Konzentrat mit Wasser auf die gewünschte Konzentration.

- 10 Kohlblätter (*Brassica oleracea*) werden durch Tauchen in die Wirkstoffzubereitung der gewünschten Konzentration behandelt und mit Raupen der Kohlschabe (*Plutella maculipennis*) besetzt, solange die Blätter noch feucht sind.

Nach der gewünschten Zeit wird die Abtötung in % bestimmt. Dabei bedeutet 100 %, daß alle Raupen abgetötet wurden; 0 % bedeutet, daß keine Raupen abgetötet wurden.

- 15 Bei diesem Test zeigt z.B. die Verbindung des Herstellungsbeispiels (1) einen Abtötungsgrad von 100 % nach 7 Tagen bei einer Wirkstoffkonzentration von 0,1 %.

WO 94/22859

PCT/EP94/00786

- 54 -

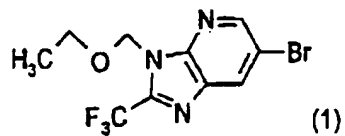
Tabelle VI

Plutella-Test
(pflanzenschädigende Insekten)

Wirkstoffe

Wirkstoffkon-
zentration
in %

Abtötungs-
grad in %
nach 7d



0,1

100

WO 94/22859

PCT/EP94/00786

- 55 -

Beispiel E:Nephotettix-Test

Lösungsmittel: 7 Gewichtsteile Dimethylformamid

Emulgator: 1 Gewichtsteil Alkylarylpolyglykolether

- 5 Zur Herstellung einer zweckmäßigen Wirkstoffzubereitung vermischt man ein Gewichtsteil Wirkstoff mit der angegebenen Menge Lösungsmittel und der angegebenen Menge Emulgator und verdünnt das Konzentrat mit Wasser auf die gewünschte Konzentration.

- 10 Reiskeimlinge (*Oryza sativa*) werden durch Tauchen in die Wirkstoffzubereitung der gewünschten Konzentration behandelt und mit Larven der Grünen Reiszikade (*Nephotettix cincticeps*) besetzt, solange die Keimlinge noch feucht sind.

Nach der gewünschten Zeit wird die Abtötung in % bestimmt. Dabei bedeutet 100 %, daß alle Zikaden abgetötet wurden; 0 % bedeutet, daß keine Zikaden abgetötet wurden.

- 15 Bei diesem Test zeigen z.B. die folgenden Verbindungen der Herstellungsbeispiele (1) und (10) Abtötungsgrade bis 100 % nach 6 Tagen bei einer Wirkstoffkonzentration von 0,1 %.

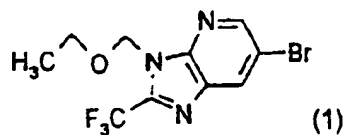
WO 94/22859

PCT/EP94/00786

- 56 -

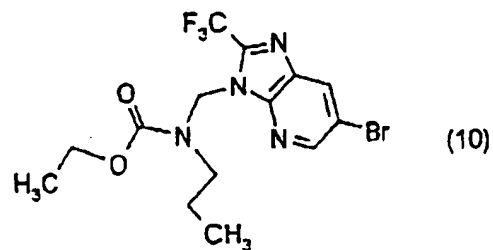
Tabelle VIINephotettix-Test
(pflanzenschädigende Insekten)

| Wirkstoffe | Wirkstoffkon- zentration in % | Abtötungs- grad in % nach 6 ^d |
|------------|-------------------------------------|--|
|------------|-------------------------------------|--|



0,1

100



0,1

100

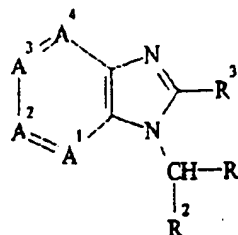
WO 94/22859

PCT/EP94/00786

- 57 -

Patentansprüche

1. Neue, substituierte, heteroanellierte Imidazole der allgemeinen Formel (I)



in welcher

- 5 R^1 für Wasserstoff oder für einen geradkettigen oder verzweigten, jeweils gegebenenfalls unsubstituierten oder substituierten Rest der Reihe Alkyl, Alkoxy oder Aryl steht,
- 10 R^2 für Hydroxy, Cyano oder für einen geradkettigen oder verzweigten, jeweils gegebenenfalls unsubstituierten oder substituierten Rest der Reihe Alkyl, Alkenyl, Alkynyl, Alkoxy, Alkenyloxy, Alkinyloxy, Alkylthio, Amino, Aminocarbonyl, Alkylcarbonyl, Alkoxycarbonyl, Alkylcarbonyloxy, Dialkoxyphosphonyl, (Hetero)Aryl, (Hetero)Arylcarbonyl, (Hetero)Aryloxycarbonyl, (Hetero)Arylcarbonyloxy oder (Hetero)Arylaminocarbonylaminocarbonyloxy steht,
- 15 R^3 für Cyano, Halogen oder für einen geradkettigen oder verzweigten jeweils gegebenenfalls unsubstituierten oder substituierten Rest der Reihe Alkyl, Alkenyl, Alkynyl, Alkylcarbonyl, Alkoxycarbonyl, Alkylcarbonyloxy, Alkenyloxy, Alkoxy, Alkinyloxy, Dialkoxyphosphonyl, Amino, Aminocarbonyl oder Aryl steht,
- 20 A^1 , A^2 , A^3 und A^4 für jeweils gegebenenfalls N(Stickstoff), N- CHR^1R^2 oder CX stehen, wobei mindestens ein, jedoch höchstens zwei Stickstoffatome im heteroanellierten Ring gleichzeitig vorkommen und dabei alle Stellungsisomere möglich sind, so daß

WO 94/22859

PCT/EP94/00786

- 58 -

CX¹, CX², CX³ bei einem Stickstoffatom und

CX¹ und CX² bei zwei Stickstoffatomen vorliegen und wenn entweder A¹, A², A³ oder A⁴ für N-CHR¹R² stehen, der Imidazolring lediglich monosubstituiert (R³) vorliegt,

5 worin

X¹, X² und X³ jeweils unabhängig voneinander für Wasserstoff, Halogen, Cyano, Nitro oder für einen geradkettigen oder verzweigten, jeweils gegebenenfalls unsubstituierten oder substituierten Rest der Reihe Alkyl, Alkoxy, Alkylthio, Alkylsulfinyl, Alkylsulfonyl oder Cycloalkyl, für
10 Hydroxycarbonyl, Alkylcarbonyl, Alkoxycarbonyl, Cycloalkyloxy-carbonyl, für jeweils gegebenenfalls substituiertes Amino oder Aminocarbonyl, oder für jeweils gegebenenfalls substituiertes Aryl, Aryloxy, Arylthio, Arylsulfinyl, Arylsulfonyl, Arylsulfonyloxy, Arylcarbonyl, Aryl-oxycarbonyl, Arylazo oder Arylthiomethylsulfonyl stehen, wobei jedoch
15 mindestens einer der Substituenten X¹, X² oder X³ für Halogenalkyl, Halogenalkoxy, Halogenalkylthio, Halogenalkylsulfinyl, Halogenalkylsulfonyl, Alkylsulfonyl, für gegebenenfalls substituiertes, ankondensiertes Dioxyalkylen, für Hydroxycarbonyl, Alkylcarbonyl, Alkoxycarbonyl, Cycloalkyloxy-carbonyl, für jeweils gegebenenfalls substituiertes Amino
20 oder Aminocarbonyl oder für jeweils gegebenenfalls substituiertes Aryl, Arylthio, Arylsulfinyl, Arylsulfonyl, Arylsulfonyloxy, Arylcarbonyl, Aryl-oxycarbonyl, Arylazo oder Arylthiomethylsulfonyl steht.

2. Neue, substituierte, heteroanellierte Imidazole der allgemeinen Formel (I) gemäß Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß

25 R¹ für Wasserstoff oder für einen geradkettigen oder verzweigten, jeweils gegebenenfalls unsubstituierten oder substituierten Rest der Reihe Alkyl, Alkoxy mit jeweils 1 bis 8 Kohlenstoffatomen oder für gegebenenfalls einfach oder mehrfach, gleich oder verschieden substituiertes Phenyl steht, wobei als Substituenten infrage kommen:

WO 94/22859

PCT/EP94/00786

- 59 -

5 Halogen, Cyano, Nitro, jeweils geradkettiges oder verzweigtes Alkyl, Alkoxy, Alkylthio, Alkylsulfinyl oder Alkylsulfonyl mit jeweils 1 bis 6 Kohlenstoffatomen, jeweils geradkettiges oder verzweigtes Halogenalkyl, Halogenalkoxy, Halogenalkylthio, Halogenalkylsulfinyl oder Halogenalkylsulfonyl mit jeweils 1 bis 6 Kohlenstoffatomen und 1 bis 13 gleichen oder verschiedenen Halogenatomen, jeweils geradkettiges oder verzweigtes Alkoxyalkyl, Alkoxyalkoxy, Alkanoyl, Alkoxy-carbonyl oder Alkoxyiminoalkyl mit jeweils 1 bis 6 Kohlenstoffatomen in den einzelnen Alkylteilen, gegebenenfalls einfach oder mehrfach, gleich oder verschieden durch Halogen und/oder geradkettiges oder verzweigtes Alkyl mit 1 bis 6 Kohlenstoffatomen und/oder geradkettiges oder verzweigtes Halogenalkyl mit 1 bis 6 Kohlenstoffatomen und 1 bis 13 gleichen oder verschiedenen Halogenatomen substituiertes, zweifach verknüpftes Dioxyalkylen mit 1 bis 5 Kohlenstoffatomen oder gegebenenfalls einfach oder mehrfach, gleich oder verschieden durch Halogen und/oder geradkettiges oder verzweigtes Alkyl mit 1 bis 6 Kohlenstoffatomen und/oder geradkettiges oder verzweigtes Halogenalkyl mit 1 bis 6 Kohlenstoffatomen und 1 bis 13 gleichen oder verschiedenen Halogenatomen substituiertes Phenyl,

20 R² für Hydroxy, Cyano oder für einen geradkettigen oder verzweigten und jeweils gegebenenfalls einfach oder mehrfach, gleich oder verschieden substituierten Rest der Reihe Alkyl, Alkenyl, Alkinyl, Alkoxy, Alkenyloxy, Alkinyloxy, Alkylthio, Alkylcarbonyl, Alkoxy-carbonyl, Alkylcarbonyloxy oder Dialkoxylphosphonyl mit jeweils bis zu 8 Kohlenstoffatomen in den einzelnen Alkyl bzw. Alkenyl oder Alkinylteilen steht, wobei als Substituenten jeweils infrage kommen:

30 Fluor, Chlor, Brom, Iod, geradkettiges oder verzweigtes Alkoxy mit 1 bis 8 Kohlenstoffatomen oder jeweils gegebenenfalls einfach oder mehrfach, gleich oder verschieden substituiertes Aryl mit 6 bis 10 Kohlenstoffatomen oder Heteroaryl mit 2 bis 9 Kohlenstoffatomen und 1 bis 5 Heteroatomen - insbesondere Stickstoff, Sauerstoff und/oder Schwefel - steht, wobei als Aryl- bzw. Heteroarylsubstituenten die bei R¹ genannten infrage kommen,

WO 94/22859

PCT/EP94/00786

- 60 -

R² außerdem für jeweils gegebenenfalls einfach oder zweifach, gleich oder verschieden substituiertes Amino oder Aminocarbonyl steht, wobei als Substituenten jeweils infrage kommen:

5 Formyl, geradkettiges oder verzweigtes Alkyl mit 1 bis 8 Kohlenstoffatomen, geradkettiges oder verzweigtes Alkenyl mit 2 bis 8 Kohlenstoffatomen, geradkettiges oder verzweigtes Alkylsulfonyl mit 1 bis 8 Kohlenstoffatomen, jeweils gegebenenfalls einfach oder zweifach, gleich oder verschieden durch geradkettiges oder verzweigtes Alkyl mit 1 bis 8 Kohlenstoffatomen substituiertes Carbamoyl, Thiocarbamoyl oder
10 Sulfamoyl, Cycloalkyl, Cycloalkylcarbonyl oder Cycloalkyloxycarbonyl mit jeweils 3 bis 8 Kohlenstoffatomen im Cycloalkylteil, Alkylcarbonyl, Alkenylcarbonyl, Alkoxycarbonyl, Alkenyloxycarbonyl, Alkylthiocarbonyl, Alkoxy-thiocarbonyl oder Alkylthio-thiocarbonyl mit jeweils 1 bis 8 Kohlenstoffatomen in den einzelnen geradkettigen oder verzweigten
15 Alkylteilen, jeweils zweifach verknüpft und ringgeschlossenes Alkandiyldicarbonyl oder Alkandiyldioxycarbonyl mit jeweils 2 bis 6 Kohlenstoffatomen im Alkandiyldicarbonylteil, jeweils gegebenenfalls im Arylteil einfach oder mehrfach, gleich oder verschieden substituiertes Arylalkyl, Arylalkylcarbonyl oder Arylalkyloxycarbonyl mit jeweils 6 bis 10 Kohlenstoffatomen im Arylteil und 1 bis 8 Kohlenstoffatomen im geradkettigen oder verzweigten Alkylteil oder jeweils gegebenenfalls im Arylteil einfach oder mehrfach, gleich oder verschieden substituiertes Aryl, Arylcarbonyl oder Aryloxycarbonyl mit jeweils 6 bis 10 Kohlenstoffatomen im Arylteil, wobei als Arylsubstituenten jeweils die bei R¹ genannten infrage kommen,

25 R² außerdem für jeweils gegebenenfalls einfach oder mehrfach, gleich oder verschieden substituiertes Aryl, Arylcarbonyl, Aryloxycarbonyl, Arylcarbonyloxy oder Arylaminocarbonylaminocarbonyloxy mit jeweils 6 bis 10 Kohlenstoffatomen im Arylteil steht, wobei als Arylsubstituenten jeweils die bei R¹ genannten infrage kommen,

30 R² außerdem für jeweils gegebenenfalls einfach oder mehrfach, gleich oder verschieden substituiertes Heteroaryl, Heteroarylcarbonyl, Heteroaryloxy-

WO 94/22859

PCT/EP94/00786

- 61 -

5 carbonyl, Heteroarylcarbonyloxy oder Heteroarylamino-carbonylaminocar-
bonyloxy mit jeweils 2 bis 9 Kohlenstoffatomen und 1 bis 5 gleichen oder
verschiedenen Heteroatomen - insbesondere Stickstoff, Sauerstoff und/
oder Schwefel - im Heteroarylteil steht, wobei als Heteroarylsubstituenten
jeweils die bei R¹ genannten Arylsubstituenten infrage kommen,

10 R³ für Cyano, Fluor, Chlor, Brom, Iod oder für einen geradkettigen oder
verzweigten, jeweils gegebenenfalls unsubstituierten oder substituierten
Rest der Reihe Cycloalkyl, Alkyl, Alkenyl, Alkynyl, Alkylcarbonyl,
Alkoxy-carbonyl, Alkylcarbonyloxy, Alkenyloxy, Alkoxy, Alkenyloxy mit
jeweils bis zu 8 Kohlenstoffatomen in den einzelnen Alkyl, Alkenyl oder
Alkynylteilen, wobei als Substituenten jeweils infrage kommen: Fluor,
Chlor, Brom, Iod, geradkettiges oder verzweigtes Alkoxy mit 1 bis 8
Kohlenstoffatomen oder jeweils gegebenenfalls einfach oder mehrfach,
gleich oder verschieden substituiertes Aryl mit 6 bis 10 Kohlenstoffatomen
15 oder Heteroaryl mit 2 bis 9 Kohlenstoffatomen und 1 bis 5 Heteroatomen
- insbesondere Stickstoff, Sauerstoff und/oder Schwefel - steht, wobei als
Aryl bzw. Heteroarylsubstituenten die bei R¹ genannten infrage kommen,

20 R³ außerdem für jeweils gegebenenfalls einfach oder zweifach, gleich oder
verschieden substituiertes Amino oder Aminocarbonyl steht, wobei als
Substituenten jeweils infrage kommen:

25 Formyl, geradkettiges oder verzweigtes Alkyl mit 1 bis 8 Kohlen-
stoffatomen, geradkettiges oder verzweigtes Alkenyl mit 2 bis 8
Kohlenstoffatomen, geradkettiges oder verzweigtes Alkylsulfonyl mit 1
bis 8 Kohlenstoffatomen, jeweils gegebenenfalls einfach oder zweifach,
gleich oder verschieden durch geradkettiges oder verzweigtes Alkyl mit 1
bis 8 Kohlenstoffatomen substituiertes Carbamoyl, Thiocarbamoyl oder
Sulfamoyl, Cycloalkyl, Cycloalkylcarbonyl oder Cycloalkyloxycarbonyl
mit jeweils 3 bis 8 Kohlenstoffatomen im Cycloalkylteil, Alkylcarbonyl,
Alkenylcarbonyl, Alkoxy-carbonyl, Alkenyloxycarbonyl, Alkylthio-
30 carbonyl, Alkoxy-thiocarbonyl oder Alkylthio-thiocarbonyl mit jeweils 1
bis 8 Kohlenstoffatomen in den einzelnen geradkettigen oder verzweigten

WO 94/22859

PCT/EP94/00786

- 62 -

- Alkylteilen, jeweils zweifach verknüpftes und ringgeschlossenes Alkandiyldicarbonyl oder Alkandiyloxycarbonyl mit jeweils 2 bis 6 Kohlenstoffatomen im Alkandiyldenteil, jeweils gegebenenfalls im Arylteil einfach oder mehrfach, gleich oder verschieden substituiertes Arylalkyl, Arylalkylcarbonyl oder Arylalkyloxycarbonyl mit jeweils 6 bis 10 Kohlenstoffatomen im Arylteil und 1 bis 8 Kohlenstoffatomen im geradkettigen oder verzweigten Alkylteil oder jeweils gegebenenfalls im Arylteil einfach oder mehrfach, gleich oder verschieden substituiertes Aryl, Arylcarbonyl oder Aryloxycarbonyl mit jeweils 6 bis 10 Kohlenstoffatomen im Arylteil, wobei als Arylsubstituenten jeweils die bei R^1 genannten infrage kommen,
- R^3 außerdem für jeweils gegebenenfalls einfach oder mehrfach, gleich oder verschieden substituiertes Aryl, mit jeweils 6 bis 10 Kohlenstoffatomen im Arylteil steht, wobei als Arylsubstituenten jeweils die bei R^1 genannten infrage kommen,
- A^1 , A^2 , A^3 und A^4 für jeweils gegebenenfalls N(Stickstoff), N- CHR^1R^2 oder CX stehen, wobei mindestens ein, jedoch höchstens zwei Stickstoffatome gleichzeitig im heteroanellierten Ring gleichzeitig vorkommen und dabei alle Stellungsisomere möglich sind, so daß
- CX^1 , CX^2 , CX^3 bei einem Stickstoffatom und
- CX^1 und CX^2 bei zwei Stickstoffatomen vorliegen und wenn entweder A^1 , A^2 , A^3 oder A^4 für N- CHR^1R^2 stehen, der Imidazolring lediglich monosubstituiert (R^3) vorliegt und
- X^1 , X^2 , X^3 jeweils unabhängig voneinander für Wasserstoff, Fluor, Chlor, Brom, Iod, Cyano, Nitro, für jeweils geradkettiges oder verzweigtes Alkyl, Alkoxy, Alkylthio, Alkylsulfinyl oder Alkylsulfonyl mit jeweils 1 bis 8 Kohlenstoffatomen, für Cycloalkyl mit 3 bis 8 Kohlenstoffatomen, für jeweils geradkettiges oder verzweigtes Halogenalkyl, Halogenalkoxy, Halogenalkylthio, Halogenalkylsulfinyl, Halogenalkylsulfonyl mit jeweils 1 bis 6 Kohlenstoffatomen und 1 bis 13 gleichen oder verschiedenen Halogenatomen oder für gegebenenfalls einfach oder mehrfach, gleich

WO 94/22859

PCT/EP94/00786

- 63 -

5 oder verschieden durch Halogen und/oder geradkettiges oder verzweigtes Alkyl mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen und/oder geradkettiges oder verzweigtes Halogenalkyl mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen und 1 bis 9 gleichen oder verschiedenen Halogenatomen substituiertes, zweifach verknüpftes Dioxyalkylen mit 1 bis 5 Kohlenstoffatomen stehen, außerdem für Hydroxycarbonyl, für jeweils geradkettiges oder verzweigtes Alkylcarbonyl oder Alkoxycarbonyl mit jeweils 1 bis 6 Kohlenstoffatomen im Alkylteil, für Cycloalkyloxy carbonyl mit 3 bis 8 Kohlenstoffatomen im Cycloalkylteil oder für jeweils gegebenenfalls einfach oder mehrfach, gleich oder verschieden substituiertes Amino oder Aminocarbonyl stehen, wobei als Aminosubstituenten jeweils infrage kommen:

15 jeweils geradkettiges oder verzweigtes Alkyl mit 1 bis 6 Kohlenstoffatomen, Halogenalkyl mit 1 bis 6 Kohlenstoffatomen und 1 bis 13 Halogenatomen, Alkoxyalkyl oder Alkylcarbonyl mit jeweils 1 bis 6 Kohlenstoffatomen in den einzelnen Alkylteilen oder im Arylteil jeweils gegebenenfalls einfach oder mehrfach, gleich oder verschieden substituiertes Arylcarbonyl, Arylsulfonyl, Arylaminocarbonyl oder Arylmethylsulfonyl mit jeweils 6 bis 10 Kohlenstoffatomen im Arylteil, wobei als Arylsubstituenten jeweils die bei R¹ genannten infrage kommen;

20 X¹, X², X³ außerdem für jeweils gegebenenfalls im Arylteil einfach oder mehrfach, gleich oder verschieden substituiertes Aryl, Aryloxy, Arythio, Arylsulfinyl, Arylsulfonyl, Arylsulfonyloxy, Arylcarbonyl, Aryloxycarbonyl, Arylthiomethylsulfonyl oder Arylazo mit jeweils 6 bis 10 Kohlenstoffatomen im Arylteil stehen, wobei als Arylsubstituenten jeweils die bei R¹ genannten infrage kommen und

25 wobei mindestens einer der Substituenten X¹, X² oder X³ für jeweils geradkettiges oder verzweigtes Halogenalkyl, Halogenalkoxy, Halogenalkylthio, Halogen-alkylsulfinyl, Halogenalkylsulfonyl mit jeweils 1 bis 6 Kohlenstoffatomen und 1 bis 13 gleichen oder verschiedenen Halogenatomen, für geradkettiges oder verzweigtes Alkylsulfonyl mit 1 bis 6 Kohlenstoffatomen oder für gegebenenfalls einfach oder mehrfach, gleich

WO 94/22859

PCT/EP94/00786

- 64 -

5 oder verschieden durch Halogen und/oder geradkettiges oder verzweigtes Alkyl mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen und/oder geradkettiges oder verzweigtes Halogenalkyl mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen und 1 bis 9 gleichen oder verschiedenen Halogenatomen substituiertes, zweifach verknüpftes Dioxyalkylen mit 1 bis 5 Kohlenstoffatomen steht, außerdem für Hydroxycarbonyl, für jeweils geradkettiges oder verzweigtes Alkylcarbonyl oder Alkoxycarbonyl mit jeweils 1 bis 6 Kohlenstoffatomen im Alkylteil, für Cycloalkyloxy carbonyl mit 3 bis 8 Kohlenstoffatomen im Cycloalkylteil oder für jeweils gegebenenfalls einfach oder mehrfach, gleich oder verschieden substituiertes Amino oder Aminocarbonyl steht, wobei als Aminosubstituenten jeweils infrage kommen:

15 jeweils geradkettiges oder verzweigtes Alkyl mit 1 bis 6 Kohlenstoffatomen, Halogenalkyl mit 1 bis 6 Kohlenstoffatomen und 1 bis 13 Halogenatomen, Alkoxyalkyl oder Alkylcarbonyl mit jeweils 1 bis 6 Kohlenstoffatomen in den einzelnen Alkylteilen oder im Arylteil jeweils gegebenenfalls einfach oder mehrfach, gleich oder verschieden substituiertes Arylcarbonyl, Arylsulfonyl, Arylaminocarbonyl oder Arylmethylsulfonyl mit jeweils 6 bis 10 Kohlenstoffatomen im Arylteil, wobei als Arylsubstituenten jeweils die bei R¹ genannten infrage kommen;

20 X¹, X², X³ außerdem für jeweils gegebenenfalls im Arylteil einfach oder mehrfach, gleich oder verschieden substituiertes Aryl, Arylthio, Arylsulfinyl, Arylsulfonyl, Arylsulfonyloxy, Arylcarbonyl, Aryloxy-carbonyl, Arylthiomethylsulfonyl oder Arylazo mit jeweils 6 bis 10 Kohlenstoffatomen im Arylteil stehen, wobei als Arylsubstituenten jeweils die bei R¹ genannten infrage kommen.

25 3. Neue, substituierte, heteroanellierte Imidazole der allgemeinen Formel (I) gemäß Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß

30 R¹ für Wasserstoff, oder für einen jeweils gegebenenfalls unsubstituierten oder substituierten, geradkettigen oder verzweigten Rest der Reihe Alkyl, Alkoxy mit jeweils 1 bis 6 Kohlenstoffatomen oder für gegebenenfalls

WO 94/22859

PCT/EP94/00786

- 65 -

einfach bis dreifach, gleich oder verschieden substituiertes Phenyl steht, wobei als Substituenten infrage kommen:

- 5 Fluor, Chlor, Brom, Iod, Cyano, Nitro, jeweils geradkettiges oder verzweigtes Alkyl, Alkoxy, Alkylthio, Alkylsulfinyl oder Alkylsulfonyl mit jeweils 1 bis 4 Kohlenstoffatomen, jeweils geradkettiges oder verzweigtes Halogenalkyl, Halogenalkoxy, Halogenalkylthio, Halogenalkylsulfinyl oder Halogenalkylsulfonyl mit jeweils 1 bis 4 Kohlenstoffatomen und 1 bis 9 gleichen oder verschiedenen Halogenatomen, jeweils geradkettiges oder verzweigtes Alkoxyalkyl, Alkoxyalkoxy, Alkanoyl, Alkoxycarbonyl oder
- 10 Alkoximinoalkyl mit jeweils 1 bis 4 Kohlenstoffatomen in den einzelnen Alkylteilen, gegebenenfalls einfach bis sechsfach, gleich oder verschieden durch Halogen und/oder geradkettiges oder verzweigtes Alkyl mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen und/oder geradkettiges oder verzweigtes Halogenalkyl mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen und 1 bis 9 gleichen oder verschiedenen
- 15 Halogenatomen substituiertes, zweifach verknüpftes Dioxyalkylen mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen oder gegebenenfalls einfach bis fünffach, gleich oder verschieden durch Halogen und/oder geradkettiges oder verzweigtes Alkyl mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen und/oder geradkettiges oder verzweigtes Halogenalkyl mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen und 1 bis 9 gleichen oder verschiedenen Halogenatomen substituiertes Phenyl, wobei
- 20 Halogen jeweils für Fluor, Chlor, Brom, Iod steht,
- R² für Hydroxy, Cyano oder für einen geradkettigen oder verzweigten jeweils gegebenenfalls einfach bis fünffach, gleich oder verschieden durch Fluor, Chlor, Brom oder Iod substituierten Rest der Reihe Alkyl, Alkenyl,
- 25 Alkynyl, Alkoxy, Alkenyloxy, Alkynyloxy, Alkylthio, Alkylcarbonyl, Alkoxycarbonyl, Alkylcarbonyloxy oder Dialkoxyposphonyl mit jeweils bis zu 6 Kohlenstoffatomen in den einzelnen Alkyl bzw. Alkenyl oder Alkynylteilen oder für jeweils gegebenenfalls einfach bis dreifach, gleich oder verschieden substituiertes Alkyl, Alkenyl, Alkynyl, Alkoxy, Alkenyloxy, Alkynyloxy, Alkylthio, Alkylcarbonyl, Alkoxycarbonyl,
- 30 Alkylcarbonyloxy oder Dialkoxyposphonyl mit jeweils bis zu 6 Kohlen-

WO 94/22859

PCT/E194/00786

- 66 -

stoffatomen in den einzelnen Alkyl bzw. Alkenyl oder Alkinylteilen steht, wobei als Substituenten jeweils infrage kommen:

geradkettiges oder verzweigtes Alkoxy mit 1 bis 6 Kohlenstoffatomen oder jeweils gegebenenfalls einfach bis dreifach, gleich oder verschieden substituierendes Aryl mit 6 oder 10 Kohlenstoffatomen oder Heteroaryl mit 2 bis 9 Kohlenstoffatomen und 1 bis 4 Heteroatomen - insbesondere Stickstoff, Sauerstoff und/oder Schwefel - steht, wobei als Aryl- bzw. Heteroarylsubstituenten die bei R¹ genannten infrage kommen,

R² außerdem für jeweils gegebenenfalls einfach oder zweifach, gleich oder verschieden substituierendes Amino oder Aminocarbonyl steht, wobei als Substituenten jeweils infrage kommen:

Formyl, geradkettiges oder verzweigtes Alkyl mit 1 bis 6 Kohlenstoffatomen, geradkettiges oder verzweigtes Alkenyl mit 2 bis 6 Kohlenstoffatomen, geradkettiges oder verzweigtes Alkylsulfonyl mit 1 bis 6 Kohlenstoffatomen, jeweils gegebenenfalls einfach oder zweifach, gleich oder verschieden durch geradkettiges oder verzweigtes Alkyl mit 1 bis 6 Kohlenstoffatomen substituierendes Carbamoyl, Thiocarbamoyl oder Sulfamoyl, Cycloalkyl, Cycloalkylcarbonyl oder Cycloalkyloxycarbonyl mit jeweils 3 bis 7 Kohlenstoffatomen im Cycloalkylteil, Alkylcarbonyl, Alkenylcarbonyl, Alkoxycarbonyl, Alkenyloxycarbonyl, Alkylthiocarbonyl, Alkoxy-thiocarbonyl oder Alkylthio-thiocarbonyl mit jeweils 1 bis 6 Kohlenstoffatomen in den einzelnen geradkettigen oder verzweigten Alkylteilen, jeweils zweifach verknüpftes und ringgeschlossenes Alkandiylcarbonyl oder Alkandiylloxycarbonyl mit jeweils 2 bis 5 Kohlenstoffatomen im Alkandiylteil, jeweils gegebenenfalls im Arylteil einfach bis dreifach, gleich oder verschieden substituierendes Arylalkyl, Arylalkylcarbonyl oder Arylalkyloxycarbonyl mit jeweils 6 oder 10 Kohlenstoffatomen im Arylteil und 1 bis 6 Kohlenstoffatomen im geradkettigen oder verzweigten Alkylteil oder jeweils gegebenenfalls im Arylteil einfach bis dreifach, gleich oder verschieden substituierendes Aryl, Arylcarbonyl oder Aryloxycarbonyl mit jeweils 6 oder 10 Kohlenstoffatomen im Aryl-

WO 94/22859

PCT/EP94/00786

- 67 -

teil, wobei als Arylsubstituenten jeweils die bei R^1 genannten infrage kommen,

5 R^2 außerdem für jeweils gegebenenfalls einfach bis fünffach, gleich oder verschieden substituiertes Aryl, Arylcarbonyl, Aryloxycarbonyl, Arylcarbonyloxy oder Arylaminocarbonylaminocarbonyloxy mit jeweils 6 oder 10 Kohlenstoffatomen im Arylteil steht, wobei als Arylsubstituenten jeweils die bei R^1 genannten infrage kommen,

10 R^2 außerdem für jeweils gegebenenfalls einfach bis fünffach, gleich oder verschieden substituiertes Heteroaryl, Heteroarylcarbonyl, Heteroaryloxycarbonyl, Heteroarylcarbonyloxy oder Heteroarylaminocarbonylaminocarbonyloxy mit jeweils 2 bis 9 Kohlenstoffatomen und 1 bis 4 gleichen oder verschiedenen Heteroatomen - insbesondere Stickstoff, Sauerstoff und/oder Schwefel - im Heteroarylteil steht, wobei als Heteroarylsubstituenten jeweils die bei R^1 genannten Arylsubstituenten infrage kommen,

15 R^3 für Cyano, Fluor, Chlor, Brom, Iod oder für einen geradkettigen oder verzweigten, gegebenenfalls einfach bis fünffach, gleich oder verschieden durch Fluor, Chlor, Brom und/oder Iod substituierten Rest der Reihe Alkyl, Alkenyl, Alkynyl, Alkoxy, Alkenyloxy, Alkinyloxy, Alkylthio, Alkylcarbonyl, Alkoxycarbonyl oder Alkylcarbonyloxy mit jeweils bis zu 6
20 Kohlenstoffatomen in den einzelnen Alkyl bzw. Alkenyl oder Alkynylteilen oder für jeweils gegebenenfalls einfach bis dreifach, gleich oder verschieden substituiertes Cycloalkyl, Alkyl, Alkenyl, Alkynyl, Alkoxy, Alkenyloxy, Alkinyloxy, Alkylthio, Alkylcarbonyl, Alkoxycarbonyl, Alkylcarbonyloxy oder Dialkoxyposphonyl mit jeweils bis zu 6 Kohlenstoffatomen in den einzelnen Alkyl bzw. Alkenyl oder Alkynylteilen steht,
25 wobei als Substituenten jeweils infrage kommen:

30 Fluor, Chlor, Brom, Iod, geradkettiges oder verzweigtes Alkoxy mit 1 bis 6 Kohlenstoffatomen oder jeweils gegebenenfalls einfach bis dreifach, gleich oder verschieden substituiertes Aryl mit 6 oder 10 Kohlenstoffatomen oder Heteroaryl mit 2 bis 9 Kohlenstoffatomen und 1 bis 4

WO 94/22859

PCT/EP94/00786

- 68 -

Heteroatomen - insbesondere Stickstoff, Sauerstoff und/oder Schwefel - steht, wobei als Aryl- bzw. Heteroarylsubstituenten die bei R¹ genannten infrage kommen,

5 R³ außerdem für jeweils gegebenenfalls einfach oder zweifach, gleich oder verschieden substituiertes Amino oder Aminocarbonyl steht, wobei als Substituenten jeweils infrage kommen:

10 Formyl, geradkettiges oder verzweigtes Alkyl mit 1 bis 6 Kohlenstoffatomen, geradkettiges oder verzweigtes Alkenyl mit 2 bis 6 Kohlenstoffatomen, geradkettiges oder verzweigtes Alkylsulfonyl mit 1 bis 6 Kohlenstoffatomen, jeweils gegebenenfalls einfach oder zweifach, gleich oder verschieden durch geradkettiges oder verzweigtes Alkyl mit 1 bis 6 Kohlenstoffatomen substituiertes Carbamoyl, Thiocarbamoyl oder Sulfamoyl, Cycloalkyl, Cycloalkylcarbonyl oder Cycloalkyloxycarbonyl mit
15 jeweils 3 bis 7 Kohlenstoffatomen im Cycloalkylteil, Alkylcarbonyl, Alkenylcarbonyl, Alkoxycarbonyl, Alkenyloxycarbonyl, Alkylthiocarbonyl, Alkoxy-thiocarbonyl oder Alkylthio-thiocarbonyl mit jeweils 1 bis 6 Kohlenstoffatomen in den einzelnen geradkettigen oder verzweigten Alkylteilen, jeweils zweifach verknüpft und ringgeschlossenes Alkandiyldicarbonyl oder Alkandiyldioxycarbonyl mit jeweils 2 bis 5 Kohlenstoffatomen im Alkandiyldi-
20 teil, jeweils gegebenenfalls im Arylteil einfach bis dreifach, gleich oder verschieden substituiertes Arylalkyl, Arylalkylcarbonyl oder Arylalkyloxycarbonyl mit jeweils 6 oder 10 Kohlenstoffatomen im Arylteil und 1 bis 6 Kohlenstoffatomen im geradkettigen oder verzweigten Alkylteil oder jeweils gegebenenfalls im Arylteil einfach bis
25 dreifach, gleich oder verschieden substituiertes Aryl, Arylcarbonyl oder Aryloxycarbonyl mit jeweils 6 oder 10 Kohlenstoffatomen im Arylteil, wobei als Arylsubstituenten jeweils die bei R¹ genannten infrage kommen,

30 R³ außerdem für jeweils gegebenenfalls einfach bis fünffach, gleich oder verschieden substituiertes Aryl, mit jeweils 6 oder 10 Kohlenstoffatomen im Arylteil steht, wobei als Arylsubstituenten jeweils die bei R¹ genannten infrage kommen,

WO 94/22859

PCT/EP94/00756

- 69 -

A¹, A², A³ und A⁴ für jeweils gegebenenfalls N(Stickstoff), N-CHR¹R² oder CX stehen, wobei mindestens ein, jedoch höchstens zwei Stickstoffatome gleichzeitig im heteroanellierten Ring gleichzeitig vorkommen und dabei alle Stellungsisomere möglich sind, so daß

5 CX¹, CX², CX³ bei einem Stickstoffatom und

CX¹ und CX² bei zwei Stickstoffatomen vorliegen und wenn entweder A¹, A², A³ oder A⁴ für N-CHR¹R² stehen, der Imidazolring lediglich monosubstituiert (R³) vorliegt und

10 X¹, X², X³ jeweils unabhängig voneinander für Wasserstoff, Fluor, Chlor, Brom, Cyano, Nitro, für jeweils geradkettiges oder verzweigtes Alkyl, Alkoxy, Alkylthio, Alkylsulfinyl oder Alkylsulfonyl mit jeweils 1 bis 6 Kohlenstoffatomen, für Cycloalkyl mit 3 bis 7 Kohlenstoffatomen, für jeweils geradkettiges oder verzweigtes Halogenalkyl, Halogenalkoxy, Halogenalkylthio, Halogenalkylsulfinyl, Halogenalkylsulfonyl mit jeweils 1
15 bis 4 Kohlenstoffatomen und 1 bis 9 gleichen oder verschiedenen Halogenatomen oder für gegebenenfalls einfach bis sechsfach, gleich oder verschieden durch Halogen und/oder geradkettiges oder verzweigtes Alkyl mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen und/oder geradkettiges oder verzweigtes Halogenalkyl mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen und 1 bis 9 gleichen
20 oder verschiedenen Halogenatomen substituiertes, zweifach verknüpftes Dioxyalkylen mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen stehen, außerdem für Hydroxycarbonyl, für jeweils geradkettiges oder verzweigtes Alkylcarbonyl oder Alkoxycarbonyl mit jeweils 1 bis 4 Kohlenstoffatomen im Alkylteil, für Cycloalkyloxy Carbonyl mit 3 bis 7 Kohlenstoffatomen im
25 Cycloalkylteil oder für jeweils gegebenenfalls einfach oder zweifach, gleich oder verschieden substituiertes Amino oder Aminocarbonyl stehen, wobei als Aminosubstituenten jeweils infrage kommen:

jeweils geradkettiges oder verzweigtes Alkyl mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen, Halogenalkyl mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen und 1 bis
30 9 Halogenatomen, Alkoxyalkyl oder Alkylcarbonyl mit jeweils 1 bis 4

WO 94/22859

PCT/EP94/00786

- 70 -

Kohlenstoffatomen in den einzelnen Alkylteilen oder im Arylteil jeweils gegebenenfalls einfach bis fünffach, gleich oder verschieden substituiertes Arylcarbonyl, Arylsulfonyl, Arylaminocarbonyl oder Arylmethylsulfonyl mit jeweils 6 oder 10 Kohlenstoffatomen im Arylteil, wobei als Arylsubstituenten jeweils die bei R¹ genannten infrage kommen;

X¹, X², X³ außerdem für jeweils gegebenenfalls im Arylteil einfach bis fünffach, gleich oder verschieden substituiertes Aryl, Aryloxy, Arylthio, Arylsulfinyl, Arylsulfonyl, Arylsulfonyloxy, Arylcarbonyl, Aryloxy-carbonyl, Arylthiomethylsulfonyl oder Arylazo mit jeweils 6 oder 10 Kohlenstoffatomen im Arylteil stehen, wobei als Arylsubstituenten jeweils die bei R¹ genannten infrage kommen und

wobei mindestens einer der Substituenten X¹, X², X³ für jeweils geradkettiges oder verzweigtes Halogenalkyl Halogenalkoxy, Halogenalkylthio, Halogenalkylsulfinyl, Halogenalkylsulfonyl mit jeweils 1 bis 4 Kohlenstoffatomen und 1 bis 9 gleichen oder verschiedenen Halogenatomen, für geradkettiges oder verzweigtes Alkylsulfonyl mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen oder für gegebenenfalls einfach bis sechsfach, gleich oder verschieden durch Halogen und/oder geradkettiges oder verzweigtes Alkyl mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen und/oder geradkettiges oder verzweigtes Halogenalkyl mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen und 1 bis 9 gleichen oder verschiedenen Halogenatomen substituiertes, zweifach verknüpftes Dioxyalkylen mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen steht, außerdem für Hydroxycarbonyl, für jeweils geradkettiges oder verzweigtes Alkylcarbonyl oder Alkoxycarbonyl mit jeweils 1 bis 4 Kohlenstoffatomen im Alkylteil, für Cycloalkyloxy-carbonyl mit 3 bis 7 Kohlenstoffatomen im Cycloalkylteil oder für jeweils gegebenenfalls einfach oder zweifach, gleich oder verschieden substituiertes Amino oder Aminocarbonyl steht, wobei als Aminosubstituenten jeweils infrage kommen:

jeweils geradkettiges oder verzweigtes Alkyl mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen, Halogenalkyl mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen und 1 bis 9 Halogenatomen, Alkoxyalkyl oder Alkylcarbonyl mit jeweils 1 bis 4

WO 94/22859

PCT/EP94/00786

- 71 -

Kohlenstoffatomen in den einzelnen Alkylteilen oder im Arylteil jeweils gegebenenfalls einfach bis fünffach, gleich oder verschieden substituiertes Arylcarbonyl, Arylsulfonyl, Arylaminocarbonyl oder Arylmethylsulfonyl mit jeweils 6 oder 10 Kohlenstoffatomen im Arylteil, wobei als Arylsubstituenten jeweils die bei R¹ genannten infrage kommen;

X¹, X², X³ außerdem für jeweils gegebenenfalls im Arylteil einfach bis fünffach, gleich oder verschieden substituiertes Aryl, Arylthio, Arylsulfinyl, Arylsulfonyl, Arylsulfonyloxy, Arylcarbonyl, Aryloxycarbonyl, Arythiomethylsulfonyl oder Arylazo mit jeweils 6 oder 10 Kohlenstoffatomen im Arylteil wie Phenyl oder Naphthyl stehen, wobei als Arylsubstituenten jeweils die bei R¹ genannten infrage kommen.

4. Neue, substituierte, heteroanellierte Imidazole der allgemeinen Formel (I) gemäß Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß

R¹ für Wasserstoff oder für einen jeweils gegebenenfalls unsubstituierten oder substituierten geradkettigen oder verzweigten Rest der Reihe Alkyl, Alkoxy mit jeweils 1 bis 4 Kohlenstoffatomen oder für gegebenenfalls einfach oder zweifach, gleich oder verschieden substituiertes Phenyl steht, wobei als Substituenten infrage kommen:

Fluor, Chlor, Brom, Cyano, Nitro, jeweils geradkettiges oder verzweigtes Alkyl, Alkoxy, Alkylthio, Alkylsulfinyl oder Alkylsulfonyl mit jeweils 1 bis 3 Kohlenstoffatomen, jeweils geradkettiges oder verzweigtes Halogenalkyl, Halogenalkoxy, Halogenalkylthio, Halogenalkylsulfinyl oder Halogenalkylsulfonyl mit jeweils 1 bis 3 Kohlenstoffatomen und 1 bis 7 gleichen oder verschiedenen Halogenatomen, jeweils geradkettiges oder verzweigtes Alkoxyalkyl, Alkoxyalkoxy, Alkanoyl, Alkoxycarbonyl oder Alkoximinoalkyl mit jeweils 1 bis 3 Kohlenstoffatomen in den einzelnen Alkylteilen, gegebenenfalls einfach bis vierfach, gleich oder verschieden durch Halogen und/oder geradkettiges oder verzweigtes Alkyl mit 1 bis 3 Kohlenstoffatomen und/oder geradkettiges oder verzweigtes Halogenalkyl mit 1 bis 3 Kohlenstoffatomen und 1 bis 7 gleichen oder verschiedenen Halo-

WO 94/22859

PCT/EP94/00786

- 72 -

- 5 genatomen substituiertes, zweifach verknüpftes Dioxyalkylen mit 1 bis 3 Kohlenstoffatomen oder gegebenenfalls einfach bis dreifach, gleich oder verschieden durch Halogen und/oder geradkettiges oder verzweigtes Alkyl mit 1 bis 3 Kohlenstoffatomen und/oder geradkettiges oder verzweigtes Halogenalkyl mit 1 bis 3 Kohlenstoffatomen und 1 bis 7 gleichen oder verschiedenen Halogenatomen substituiertes Phenyl, wobei Halogen jeweils für Fluor, Chlor, Brom steht.
- 10 R² für Hydroxy, Cyano oder für einen geradkettigen oder verzweigten jeweils gegebenenfalls einfach bis dreifach, gleich oder verschieden durch Fluor, Chlor und/oder Brom substituierten Rest der Reihe Alkyl, Alkenyl, Alkynyl, Alkoxy, Alkenyloxy, Alkinyloxy, Alkylthio, Alkylcarbonyl, Alkoxycarbonyl, Alkylcarbonyloxy oder Dialkoxyphosphonyl mit jeweils bis zu 4 Kohlenstoffatomen in den einzelnen Alkyl bzw. Alkenyl oder Alkynylteilen steht, oder für jeweils gegebenenfalls einfach oder zweifach, gleich oder verschieden substituiertes Alkyl, Alkenyl, Alkynyl, Alkoxy, Alkenyloxy, Alkinyloxy, Alkylthio, Alkylcarbonyl, Alkoxycarbonyl, Alkylcarbonyloxy oder Dialkoxyphosphoryl mit jeweils bis zu 4 Kohlenstoffatomen in den einzelnen Alkyl bzw. Alkenyl oder Alkynylteilen steht, wobei als Substituenten jeweils infrage kommen:
- 15
- 20 geradkettiges oder verzweigtes Alkoxy mit 1 bis 3 Kohlenstoffatomen oder gegebenenfalls einfach oder zweifach, gleich oder verschieden substituiertes Phenyl, wobei als Phenylsubstituenten die bei R¹ genannten infrage kommen,
- 25 R² außerdem für jeweils gegebenenfalls einfach oder zweifach, gleich oder verschieden substituiertes Amino oder Aminocarbonyl steht, wobei als Substituenten jeweils infrage kommen:
- 30 Formyl, geradkettiges oder verzweigtes Alkyl mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen, geradkettiges oder verzweigtes Alkenyl mit 2 bis 4 Kohlenstoffatomen, geradkettiges oder verzweigtes Alkylsulfonyl mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen, jeweils gegebenenfalls einfach oder zweifach, gleich oder

WO 94/22859

PCT/EP94/00786

- 73 -

- 5 verschieden durch geradkettiges oder verzweigtes Alkyl mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen substituiertes Carbamoyl, Thiocarbamoyl oder Sulfamoyl, Cycloalkyl, Cycloalkylcarbonyl oder Cycloalkyloxycarbonyl mit jeweils 3 bis 6 Kohlenstoffatomen im Cycloalkylteil, Alkylcarbonyl, Alkenylcarbonyl, Alkoxycarbonyl, Alkenyloxycarbonyl, Alkylthio-carbonyl, Alkoxy-thiocarbonyl oder Alkylthio-thiocarbonyl mit jeweils 1 bis 4 Kohlenstoffatomen in den einzelnen geradkettigen oder verzweigten Alkylteilen, jeweils zweifach verknüpft und ringgeschlossenes Alkandiyldcarbonyl oder Alkandiyloxycarbonyl mit jeweils 2 bis 4 Kohlenstoffatomen im Alkandiyldteil, jeweils gegebenenfalls im Phenylteil einfach oder zweifach, gleich oder verschieden substituiertes Phenylalkyl, Phenylalkylcarbonyl oder Phenylalkyloxycarbonyl mit jeweils 1 bis 4 Kohlenstoffatomen im geradkettigen oder verzweigten Alkylteil oder jeweils gegebenenfalls im Phenylteil einfach oder zweifach, gleich oder verschieden substituiertes Phenyl, Phenylcarbonyl oder Phenyloxycarbonyl, wobei als Phenylsubstituenten jeweils die bei R¹ genannten infrage kommen,
- 10
- 15
- 20 R² außerdem für jeweils gegebenenfalls einfach bis dreifach, gleich oder verschieden substituiertes Phenyl, Phenylcarbonyl, Phenyloxycarbonyl, Phenylcarbonyloxy oder Phenylaminocarbonylaminocarbonyloxy steht, wobei als Phenylsubstituenten jeweils die bei R¹ genannten infrage kommen,
- 25 R² außerdem für jeweils gegebenenfalls einfach bis dreifach, gleich oder verschieden substituiertes Heteroaryl, Heteroarylcarbonyl, Heteroaryloxycarbonyl, Heteroarylcarbonyloxy oder Heteroarylaminocarbonylaminocarbonyloxy mit jeweils 2 bis 9 Kohlenstoffatomen und 1 bis 3 gleichen oder verschiedenen Heteroatomen - insbesondere Stickstoff, Sauerstoff und/oder Schwefel - im Heteroarylteil steht, wobei als Heteroarylsubstituenten jeweils die bei R¹ genannten Phenylsubstituenten infrage kommen,
- 30 R³ für Cyano, Fluor, Chlor, Brom oder für einen geradkettigen oder verzweigten, gegebenenfalls einfach bis dreifach gleich oder verschieden

WO 94/22859

PCT/EP94/00786

- 74 -

5 durch Fluor, Chlor und/oder Brom substituierten Rest der Reihe Alkyl, Alkenyl, Alkynyl, Alkoxy, Alkenyloxy, Alkinyloxy, Alkylthio, Alkylcarbonyl, Alkoxycarbonyl, Alkylcarbonyloxy mit jeweils bis zu 4 Kohlenstoffatomen in den einzelnen Alkyl bzw. Alkenyl oder Alkynylteilen steht, oder für jeweils gegebenenfalls einfach oder zweifach, gleich oder verschieden substituiertes Alkyl, Alkenyl, Alkynyl, Alkoxy, Alkenyloxy, Alkinyloxy, Alkylthio, Alkylcarbonyl, Alkoxycarbonyl, Alkylcarbonyloxy oder Dialkoxyphosphoryl mit jeweils bis zu 4 Kohlenstoffatomen in den einzelnen Alkyl bzw. Alkenyl oder Alkynylteilen steht, wobei als Substituenten jeweils infrage kommen:

10 geradkettiges oder verzweigtes Alkoxy mit 1 bis 3 Kohlenstoffatomen oder gegebenenfalls einfach oder zweifach, gleich oder verschieden substituiertes Phenyl, wobei als Phenylsubstituenten die bei R¹ genannten infrage kommen,

15 R³ außerdem für jeweils gegebenenfalls einfach oder zweifach, gleich oder verschieden substituiertes Amino oder Aminocarbonyl steht, wobei als Substituenten jeweils infrage kommen:

20 Formyl, geradkettiges oder verzweigtes Alkyl mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen, geradkettiges oder verzweigtes Alkenyl mit 2 bis 4 Kohlenstoffatomen, geradkettiges oder verzweigtes Alkylsulfonyl mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen, jeweils gegebenenfalls einfach oder zweifach, gleich oder verschieden durch geradkettiges oder verzweigtes Alkyl mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen substituiertes Carbamoyl, Thiocarbamoyl oder Sulfamoyl, Cycloalkyl, Cycloalkylcarbonyl oder Cycloalkyloxycarbonyl mit
25 jeweils 3 bis 6 Kohlenstoffatomen im Cycloalkylteil, Alkylcarbonyl, Alkenylcarbonyl, Alkoxycarbonyl, Alkenyloxycarbonyl, Alkylthiocarbonyl, Alkoxy-thiocarbonyl oder Alkylthio-thiocarbonyl mit jeweils 1 bis 4 Kohlenstoffatomen in den einzelnen geradkettigen oder verzweigten Alkylteilen, jeweils zweifach verknüpftes und ringgeschlossenes Alkandiylicarbonyl oder Alkandiyloxycarbonyl mit jeweils 2 bis 4 Kohlenstoffatomen im Alkandiyteil, jeweils gegebenenfalls im Phenyteil einfach
30

WO 94/22859

FCT/EP94/00786

- 75 -

- 5 oder zweifach, gleich oder verschieden substituiertes Phenylalkyl, Phenylalkylcarbonyl oder Phenylalkyloxycarbonyl mit jeweils 1 bis 4 Kohlenstoffatomen im geradkettigen oder verzweigten Alkylteil oder jeweils gegebenenfalls im Phenylteil einfach oder zweifach, gleich oder verschieden substituiertes Phenyl, Phenylcarbonyl oder Phenyloxycarbonyl, wobei als Phenylsubstituenten jeweils die bei R¹ genannten infrage kommen,
- 10 R³ außerdem für gegebenenfalls einfach bis dreifach, gleich oder verschieden substituiertes Phenyl, steht, wobei als Phenylsubstituenten jeweils die bei R¹ genannten infrage kommen,
- A¹, A², A³ und A⁴ für jeweils gegebenenfalls N(Stickstoff), N-CHR¹R² oder CX stehen, wobei mindestens ein, jedoch höchstens zwei Stickstoffatome gleichzeitig im heteroanellierten Ring vorkommen und dabei alle Stellungsisomere möglich sind, so daß
- 15 CX¹, CX², CX³ bei einem Stickstoffatom und CX¹ und CX² bei zwei Stickstoffatomen vorliegen und wenn entweder A¹, A², A³ oder A⁴ für N-CHR¹R² stehen, der Imidazolring lediglich monosubstituiert vorliegt und
- 20 X¹, X², X³ unabhängig voneinander jeweils für Wasserstoff, Chlor, Brom, Cyano, Nitro, für jeweils geradkettiges oder verzweigtes Alkyl, Alkoxy, Alkylthio, Alkylsulfinyl oder Alkylsulfonyl mit jeweils 1 bis 4 Kohlenstoffatomen, für Cycloalkyl mit 3, 5 oder 6 Kohlenstoffatomen, für jeweils geradkettiges oder verzweigtes Halogenalkyl, Halogenalkoxy, Halogenalkylthio, Halogenalkylsulfinyl, Halogenalkylsulfonyl mit jeweils 1 bis 3 Kohlenstoffatomen und 1 bis 7 gleichen oder verschiedenen Halogenatomen oder für gegebenenfalls einfach bis vierfach, gleich oder verschieden durch Halogen und/oder geradkettiges oder verzweigtes Alkyl mit 1 bis 3 Kohlenstoffatomen und/oder geradkettiges oder verzweigtes Halogenalkyl mit 1 bis 3 Kohlenstoffatomen und 1 bis 7 gleichen oder verschiedenen Halogenatomen substituiertes, zweifach verknüpftes
- 30

WO 94/22859

PCT/EP94/00786

- 76 -

Dioxyalkylen mit 1 bis 3 Kohlenstoffatomen stehen, außerdem für Hydroxycarbonyl, für jeweils geradkettiges oder verzweigtes Alkylcarbonyl oder Alkoxycarbonyl mit jeweils 1 bis 3 Kohlenstoffatomen im Alkylteil, für Cycloalkyloxycarbonyl mit 3, 5 oder 6 Kohlenstoffatomen im Cycloalkylteil oder für jeweils gegebenenfalls einfach oder zweifach, gleich oder verschieden substituiertes Amino oder Aminocarbonyl stehen, wobei als Aminosubstituenten jeweils infrage kommen:

jeweils geradkettiges oder verzweigtes Alkyl mit 1 bis 3 Kohlenstoffatomen, Halogenalkyl mit 1 bis 3 Kohlenstoffatomen und 1 bis 7 Halogenatomen, Alkoxyalkyl oder Alkylcarbonyl mit jeweils 1 bis 3 Kohlenstoffatomen in den einzelnen Alkylteilen oder im Phenylteil jeweils gegebenenfalls einfach bis dreifach, gleich oder verschieden substituiertes Phenylcarbonyl, Phenylsulfonyl, Phenylaminocarbonyl oder Phenylmethylsulfonyl, wobei als Phenylsubstituenten jeweils die bei R¹ genannten infrage kommen;

X¹, X², X³ außerdem für jeweils gegebenenfalls im Phenylteil einfach bis dreifach, gleich oder verschieden substituiertes Phenyl, Phenyloxy, Phenylthio, Phenylsulfinyl, Phenylsulfonyl, Phenylsulfonyloxy, Phenylcarbonyl, Phenyloxycarbonyl, Phenylthiomethylsulfonyl oder Phenylazo stehen, wobei als Phenylsubstituenten jeweils die bei R¹ genannten infrage kommen und

wobei mindestens einer der Substituenten X¹, X², X³ für jeweils geradkettiges oder verzweigtes Halogenalkyl, Halogenalkoxy, Halogenalkylthio, Halogenalkylsulfinyl, Halogenalkylsulfonyl mit jeweils 1 bis 3 Kohlenstoffatomen und 1 bis 7 gleichen oder verschiedenen Halogenatomen, für geradkettiges oder verzweigtes Alkylsulfonyl mit 1 bis 3 Kohlenstoffatomen oder für gegebenenfalls einfach bis vierfach, gleich oder verschieden durch Halogen und/oder geradkettiges oder verzweigtes Alkyl mit 1 bis 3 Kohlenstoffatomen und/oder geradkettiges oder verzweigtes Halogenalkyl mit 1 bis 3 Kohlenstoffatomen und 1 bis 7 gleichen oder verschiedenen Halogenatomen substituiertes, zweifach verknüpftes

WO 94/22859

PCT/EP94/00786

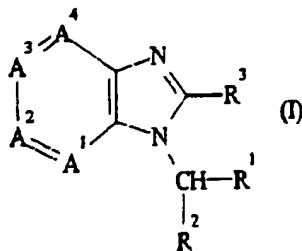
- 77 -

Dioxyalkylen mit 1 bis 3 Kohlenstoffatomen steht, außerdem für Hydroxycarbonyl, für jeweils geradkettiges oder verzweigtes Alkylcarbonyl oder Alkoxycarbonyl mit jeweils 1 bis 3 Kohlenstoffatomen im Alkylteil, für Cycloalkyloxycarbonyl mit 3, 5 oder 6 Kohlenstoffatomen im Cycloalkylteil oder für jeweils gegebenenfalls einfach oder zweifach, gleich oder verschieden substituiertes Amino oder Aminocarbonyl steht, wobei als Aminosubstituenten jeweils infrage kommen:

jeweils geradkettiges oder verzweigtes Alkyl mit 1 bis 3 Kohlenstoffatomen, Halogenalkyl mit 1 bis 3 Kohlenstoffatomen und 1 bis 7 Halogenatomen, Alkoxyalkyl oder Alkylcarbonyl mit jeweils 1 bis 3 Kohlenstoffatomen in den einzelnen Alkylteilen oder im Phenylteil jeweils gegebenenfalls einfach bis dreifach, gleich oder verschieden substituiertes Phenylcarbonyl, Phenylsulfonyl, Phenylaminocarbonyl oder Phenylmethylsulfonyl, wobei als Phenylsubstituenten jeweils die bei R¹ genannten infrage kommen;

X¹, X², X³ außerdem für jeweils gegebenenfalls im Phenylteil einfach bis dreifach, gleich oder verschieden substituiertes Phenyl, Phenylthio, Phenylsulfinyl, Phenylsulfonyl, Phenylsulfonyloxy, Phenylcarbonyl, Phenylloxycarbonyl, Phenylthiomethylsulfonyl oder Phenylazo, wobei als Phenylsubstituenten jeweils die bei R¹ genannten infrage kommen infrage kommen.

5. Verfahren zur Herstellung neuer, substituierter, anellierter Imidazole der allgemeinen Formel (I)



25

in welcher

WO 94/22859

PCT/EP94/00786

- 78 -

- R¹ für Wasserstoff oder für einen geradkettigen oder verzweigten, jeweils gegebenenfalls unsubstituierten oder substituierten Rest der Reihe Alkyl, Alkoxy oder Aryl steht,
- 5 R² für Hydroxy, Cyano oder für einen geradkettigen oder verzweigten, jeweils gegebenenfalls unsubstituierten oder substituierten Rest der Reihe Alkyl, Alkenyl, Alkynyl, Alkoxy, Alkenyloxy, Alkinyloxy, Alkylthio, Amino, Aminocarbonyl, Alkylcarbonyl, Alkoxycarbonyl, Alkylcarbonyloxy, Dialkoxyposphonyl, (Hetero)Aryl, (Hetero)Arylcarbonyl, (Hetero)-Aryloxycarbonyl, (Hetero)Arylcarbonyloxy oder (Hetero)Arylaminocarbonylaminocarbonyloxy steht,
- 10 R³ für Cyano, Halogen oder für einen geradkettigen oder verzweigten jeweils gegebenenfalls unsubstituierten oder substituierten Rest der Reihe Alkyl, Alkenyl, Alkynyl, Alkylcarbonyl, Alkoxycarbonyl, Alkylcarbonyloxy, Alkenyloxy, Alkoxy, Alkinyloxy, Amino, Aminocarbonyl oder Aryl steht,
- 15 A¹, A², A³ und A⁴ für jeweils gegebenenfalls N(Stickstoff), N-CHR¹R² oder CX stehen, wobei mindestens ein, jedoch höchstens zwei Stickstoffatome im heteroanellierten Ring gleichzeitig vorkommen und dabei alle Stellungsisomere möglich sind, so daß
- CX¹, CX², CX³ bei einem Stickstoffatom und
- 20 CX¹ und CX² bei zwei Stickstoffatomen vorliegen und wenn entweder A¹, A², A³ oder A⁴ für N-CHR¹R² stehen, der Imidazolring lediglich monosubstituiert vorliegt,
- worin
- 25 X¹, X² und X³ jeweils unabhängig voneinander für Wasserstoff, Halogen, Cyano, Nitro oder für einen geradkettigen oder verzweigten, jeweils gegebenenfalls unsubstituierten oder substituierten Rest der Reihe Alkyl, Alkoxy, Alkylthio, Alkylsulfinyl, Alkylsulfonyl oder Cycloalkyl, für Hydroxycarbonyl, Alkylcarbonyl, Alkoxycarbonyl, Cycloalkyloxy-

WO 94/22859

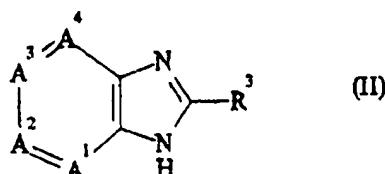
PCT/EP94/00786

- 79 -

carbonyl, für jeweils gegebenenfalls substituiertes Amino oder Amino-
carbonyl, oder für jeweils gegebenenfalls substituiertes Aryl, Aryloxy,
Arylthio, Arylsulfinyl, Arylsulfonyl, Arylsulfonyloxy, Arylcarbonyl, Aryl-
oxycarbonyl, Arylazo oder Arylthiomethylsulfonyl stehen, wobei jedoch
mindestens einer der Substituenten X^1 , X^2 oder X^3 für Halogenalkyl, Ha-
logenalkoxy, Halogenalkylthio, Halogenalkylsulfinyl, Halogenalkylsulfo-
nyl, Alkylsulfonyl, für gegebenenfalls substituiertes, ankondensiertes
Dioxyalkylen, für Hydroxycarbonyl, Alkylcarbonyl, Alkoxycarbonyl,
Cycloalkyloxycarbonyl, für jeweils gegebenenfalls substituiertes Amino
oder Aminocarbonyl oder für jeweils gegebenenfalls substituiertes Aryl,
Arylthio, Arylsulfinyl, Arylsulfonyl, Arylsulfonyloxy, Arylcarbonyl, Aryl-
oxycarbonyl, Arylazo oder Arylthiomethylsulfonyl steht,

dadurch gekennzeichnet, daß man

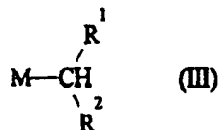
1H-substituierte heteroanellierte Imidazole der Formel (II),



in welcher

A^1 , A^2 , A^3 , A^4 und R^3 die oben angegebenen Bedeutungen haben,

mit Verbindungen der Formel (III),



in welcher

M für eine geeignete Abgangsgruppe steht,

WO 94/22859

PCT/EP94/00786

- 80 -

R¹ und R² die oben angegebenen Bedeutungen haben

gegebenenfalls in Gegenwart eines Verdünnungsmittels und gegebenenfalls in Gegenwart eines Reaktionshilfsmittels umgesetzt.

- 5 6. Herbizide Mittel, gekennzeichnet durch einen Gehalt an mindestens einem substituierten, heteroanellierten Imidazol der Formel (I) gemäß den Ansprüchen 1 bis 5.
- 10 7. Verfahren zur Bekämpfung von unerwünschten Pflanzen, dadurch gekennzeichnet, daß man substituierte, heteroanellierte Imidazole der allgemeinen Formel (I) gemäß den Ansprüchen 1 bis 5 auf Pflanzen und/oder ihren Lebensraum einwirken läßt.
8. Verwendung von substituierten, heteroanellierten Imidazolen der allgemeinen Formel (I) gemäß der Ansprüche 1 bis 5 zur Bekämpfung von unerwünschten Pflanzen.
- 15 9. Verfahren zur Herstellung von herbiziden und insektiziden Mitteln, dadurch gekennzeichnet, daß man substituierte, heteroanellierte Imidazole der allgemeinen Formel (I) gemäß der Ansprüche 1 bis 5 mit Streckmitteln und/oder oberflächenaktiven Substanzen vermischt.
- 20 10. Verwendung von substituierten heteroanellierten Imidazolen der allgemeinen Formel (I) gemäß den Ansprüchen 1 bis 5 zur Bekämpfung von tierischen Schädlingen.

PCT/EP 94/00786

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER
 IPC 5 C07D471/04 C07D487/04 A01N43/90

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

IPC 5 C07D

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practical, search terms used)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

| Category | Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages | Relevant to claim No. |
|----------|---|-----------------------|
| A | GB,A,1 165 138 (FISONS PEST CONTROL LTD) 24 September 1969 *page 3-4: claims* | 1-10 |
| A | GB,A,1 186 504 (FISONS PEST CONTROL) 2 April 1970 *page 10-14* | 1-10 |
| A | GB,A,1 143 082 (FISONS PEST CONTROL) 19 February 1969 *page 7-10: claims* | 1-10 |
| A | CH,A,511 873 (FISONS LIMITED) 31 August 1971 *see the whole document* | 1-10 |
| -/- | | |

☒ Further documents are listed in the continuation of box C.

☒ Patent family members are listed in annex.

* Special categories of cited documents:

- *A* document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance
- *E* earlier document but published on or after the international filing date
- *L* document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)
- *O* document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means
- *P* document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

T later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention

X document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone

Y document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art

Z document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search

7 July 1994

Date of mailing of the international search report

18. 07. 94

Name and mailing address of the ISA

European Patent Office, P.B. 5818 Patentlaan 2
 NL - 2280 HV Rijswijk
 Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 631 epo nl.
 Fax (+31-70) 340-3016

Authorized officer

Luyten, H

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International Application No.

PCT/EP 94/00786

C.(Continuation) DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

| Category | Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages | Relevant to claim No. |
|----------|--|-----------------------|
| A | FR,A,1 592 512 (FISONS PEST CONTROL LTD) 19 May 1970 *page 10-13* ----- | 1-10 |

INTERNATIONAL PATENT INFORMATION
 Information on patent family members

International Application No

PCT/EP 94/00786

| Patent document cited in search report | Publication date | Patent family member(s) | Publication date |
|---|---------------------|----------------------------|---------------------|
| GB-A-1165138 | 24-09-69 | BE-A- 697714 | 27-10-67 |
| | | CH-A- 464941 | |
| | | DE-A- 1670863 | 11-03-71 |
| | | FR-A- 1522661 | |
| | | LU-A- 53533 | 27-10-67 |
| | | NL-A- 6705871 | 06-11-67 |
| | | US-A- 3449352 | 10-06-69 |
| GB-A-1186504 | 02-04-70 | BE-A- 704877 | 09-04-68 |
| | | CH-A- 486842 | 15-03-70 |
| | | DE-A- 1670940 | 25-02-71 |
| | | FR-A- 1540740 | |
| | | LU-A- 54631 | 07-05-68 |
| | | NL-A- 6713923 | 16-04-68 |
| | | OA-A- 2712 | 15-12-70 |
| GB-A-1143082 | | BE-A- 679235 | 07-10-66 |
| | | CH-A- 456243 | |
| | | DE-A- 1670689 | 29-10-70 |
| | | DE-A- 1670750 | 04-03-71 |
| | | FR-A- 1475588 | |
| | | NL-A- 6605131 | 17-10-66 |
| | | OA-A- 2227 | 05-05-70 |
| | | US-A- 3561948 | 09-02-71 |
| CH-A-511873 | 31-08-71 | NL-A- 6917115 | 26-05-70 |
| FR-A-1592512 | 19-05-70 | NONE | |

| | | |
|---|--|---|
| Internationale Aktenzeichen PCT/EP 94/00786 | | |
| A. KLASIFIZIERUNG DES ANMELDUNGSGEGENSTANDES IPK 5 C07D471/04 C07D487/04 A01N43/90 | | |
| Nach der internationalen Patentklassifikation (IPK) oder nach der nationalen Klassifikation und der IPK | | |
| B. RECHERCHIERTE GEBIETE | | |
| Recherchierte Mindestprüfung (Klassifikationssystem und Klassifikationssymbole) IPK 5 C07D | | |
| Recherchierte aber nicht zum Mindestprüfung gehörende Veröffentlichungen, soweit diese unter die recherchierten Gebiete fallen | | |
| Während der internationalen Recherche konsultierte elektronische Datenbank (Name der Datenbank und evtl. verwendete Suchbegriffe) | | |
| C. ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN | | |
| Kategorie | Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile | Heft. Anspruch Nr. |
| A | GB,A,1 165 138 (FISONS PEST CONTROL LTD) 24. September 1969 *Seite 3-4: Ansprüche* | 1-10 |
| A | GB,A,1 186 504 (FISONS PEST CONTROL) 2. April 1970 *Seite 10-14* | 1-10 |
| A | GB,A,1 143 082 (FISONS PEST CONTROL) 19. Februar 1969 *Seite 7-10: Ansprüche* | 1-10 |
| A | CH,A,511 873 (FISONS LIMITED) 31. August 1971 *Insgesamt* | 1-10 |
| -/- | | |
| <input checked="" type="checkbox"/> Weitere Veröffentlichungen sind der Fortsetzung von Feld C zu entnehmen <input checked="" type="checkbox"/> Siehe Anhang Patentfamilie | | |
| * Besondere Kategorien von angegebenen Veröffentlichungen : "A" Veröffentlichung, die den allgemeinen Stand der Technik definiert, aber nicht als besonders bedeutsam angesehen ist "B" Älteres Dokument, das jedoch erst am oder nach dem internationalen Anmeldedatum veröffentlicht worden ist "I" Veröffentlichung, die geeignet ist, einen Prioritätsanspruch zweifelhaft erscheinen zu lassen, oder durch die das Veröffentlichungsdatum einer anderen im Recherchenbericht genannten Veröffentlichung belegt werden soll oder die aus einem anderen besonderen Grund angegeben ist (wie angeführt) "O" Veröffentlichung, die sich auf eine mündliche Offenbarung, eine Benutzung, eine Ausstellung oder andere Maßnahmen bezieht "P" Veröffentlichung, die vor dem internationalen Anmeldedatum, aber nach dem beanspruchten Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist "T" Spätere Veröffentlichung, die nach dem internationalen Anmeldedatum oder dem Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist und mit der Anmeldung nicht kollidiert, sondern nur zum Verständnis des der Erfindung zugrundeliegenden Prinzips oder der ihr zugrundeliegenden Theorie angegeben ist "X" Veröffentlichung von besonderer Bedeutung, die beanspruchte Erfindung kann allein aufgrund dieser Veröffentlichung nicht als neu oder auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden "Y" Veröffentlichung von besonderer Bedeutung, die beanspruchte Erfindung kann nicht als auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden, wenn die Veröffentlichung mit einer oder mehreren anderen Veröffentlichungen dieser Kategorie in Verbindung gebracht wird und diese Verbindung für einen Fachmann nahelegend ist "Z" Veröffentlichung, die Mitglied derselben Patentfamilie ist | | |
| Datum des Abschlusses der internationalen Recherche 7. Juli 1994 | | Abschließdatum des internationalen Recherchenberichts 18. 07. 94 |
| Name und Postanschrift der internationalen Recherchenbehörde Europäisches Patentamt, P.B. 5818 Patentlaan 2 NL - 2280 HV Rijswijk Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl, Fax (+31-70) 340-3016 | | Revollmächtigter Beauftragter Luyten, H |

Internationales Abzeichen

PCT/Lr 94/00786

C(Fortsetzung) AJS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN

| Kategorie | Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile | Betr. Anspruch Nr. |
|-----------|--|--------------------|
| A | FR,A,1 592 512 (FISONS PEST CONTROL LTD) 19. Mai 1970 *Seite 10-13* ----- | 1-10 |

To: John Todaro

FROM: Keadrax INFORMATION SERVICE

Angaben zu Veröffentlichung: zugehörigen Patentfamilie gehören

Information: des Antrags

PCT/Lr 94/00786

| Im Recherchenbericht angeführtes Patentdokument | Datum der Veröffentlichung | Mitglied(er) der Patentfamilie | Datum der Veröffentlichung |
|--|-------------------------------|-----------------------------------|-------------------------------|
| GB-A-1165138 | 24-09-69 | BE-A- 697714 | 27-10-67 |
| | | CH-A- 464941 | |
| | | DE-A- 1670863 | 11-03-71 |
| | | FR-A- 1522661 | |
| | | LU-A- 53533 | 27-10-67 |
| | | NL-A- 6705871 | 06-11-67 |
| | | US-A- 3449352 | 10-06-69 |
| GB-A-1186504 | 02-04-70 | BE-A- 704877 | 09-04-68 |
| | | CH-A- 486842 | 15-03-70 |
| | | DE-A- 1670940 | 25-02-71 |
| | | FR-A- 1540740 | |
| | | LU-A- 54631 | 07-05-68 |
| | | NL-A- 6713923 | 16-04-68 |
| | | OA-A- 2712 | 15-12-70 |
| GB-A-1143082 | | BE-A- 679235 | 07-10-66 |
| | | CH-A- 456243 | |
| | | DE-A- 1670689 | 29-10-70 |
| | | DE-A- 1670750 | 04-03-71 |
| | | FR-A- 1475588 | |
| | | NL-A- 6605131 | 17-10-66 |
| | | OA-A- 2227 | 05-05-70 |
| | | US-A- 3561948 | 09-02-71 |
| | | | |
| CH-A-511873 | 31-08-71 | NL-A- 6917115 | 26-05-70 |
| FR-A-1592512 | 19-05-70 | KEINE | |